



## Transport in tight material enlightened by process tomography

Johannes Kulenkampff, Till Bollermann, Maria A. Cardenas Rivera, and Cornelius Fischer

Institute of Resource Ecology – Reactive Transport, Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf,  
Leipzig, Germany

**Correspondence:** Johannes Kulenkampff ([j.kulenkampff@hzdr.de](mailto:j.kulenkampff@hzdr.de))

Published: 10 November 2021

**Abstract.** The analysis of fluid transport through tight barrier materials poses two major challenges: (i) Long equilibration periods require long minimum experiment durations, and (ii) the fluid transport frequently results in complex pattern formation. Measuring times that are too short may feign transport rates that are too low; intact homogeneous samples are often missing problematic features, e.g. fractures. Both issues are detected and analyzed by using process tomography techniques, thereby providing an improved understanding of transport processes in complex materials.

We thus continuously develop and apply the positron emission tomography (PET) method for geomaterials (Kulenkampff et al., 2016). This is able to trace very low concentrations of  $\beta^+$ -emitting radionuclides during their passage through drill cores of barrier material with reasonable resolution (1 mm) and over variable periods (hours to years). The method yields time-resolved quantitative tomographic images of the tracer concentration (e.g. <https://doi.org/10.5281/zenodo.166509>), in contrast to input-output experiments like common permeability measurements, diffusion cells or break-through curves.

Our current research includes the analysis of diffusive transport in heterogeneous shales (sandy facies of the Opalinus Clay) (BMBF and HGF iCross project), the reactive flow in fracture-filling materials of crystalline rocks (Eurad FUTURE project) and transport in engineered barriers and the contact zone (Euratom Cebama, Eurad Magic, as well as MgO and Stroefun BMWi projects). The efforts combine flow field tomography, structural imaging and reactive transport modelling to improve process understanding and to provide a bridge from the molecular to the macroscopic scale.

The benefits include:

- Insight into temporal stability and spatial heterogeneity of the observed transport process
- Parameterization of local velocity distribution and effective volume as well as comparability with pore-scale model simulations
- Ability to quantify multiple internal transport rates without the need to register the delayed output signal
- Transparent and palpable visualization of processes hidden in the opaque material

The method requires specific constraints of the experimental setup (size, fluid pressure, temperature). Nevertheless, it provides unique insight into reactive transport processes observed in potential materials for nuclear waste management.

**Kurzfassung.** Bei der Analyse des Flüssigkeitstransports durch dichte Barrierematerialien stellen sich 2 große Herausforderungen: (i) Die langen Equilibrierungszeiträume erfordern lange minimale Versuchsdauern, und (ii) der Flüssigkeitstransport führt häufig zur Ausbildung komplexer Muster. Zu kurze Messzeiträume können zu geringe Transportraten vortäuschen; intakten homogenen Proben fehlen oft problematische Merkmale, z. B. Brüche. Bei Nutzung von Prozessstomographietechniken werden beide Problematiken erkannt und analysiert, wodurch diese Verfahren ein verbessertes Verständnis von Transportprozessen in komplexen Materialien ermöglichen.

Daher entwickeln und wenden wir das Verfahren der Positronenemissionstomographie (PET) für Geomaterialien kontinuierlich an (Kulenkampff et al., 2016). Sie erlaubt es, sehr niedrige Konzentrationen an  $\beta^+$  emittierenden Radionukliden während deren Passage durch Bohrlöcher von Barrierematerialien mit ausreichender Auflösung (1 mm) und über unterschiedliche Zeiträume (Stunden bis Jahre) zu detektieren. Die Methode liefert zeitaufgelöste quantitative tomographische Aufnahmen der Tracerkonzentration (z. B. <https://doi.org/10.5281/zenodo.166509>), im Gegensatz zu Input-Output-Experimenten wie gängigen Permeabilitätsmessungen, Diffusionszellen oder Durchbruchkurven.

Unsere aktuelle Forschung beinhaltet die Analyse des diffusen Transports in heterogenen Tonschiefern (sandige Fazies des Opalinuston; BMBF- und HGF-iCross-Projekt), des reaktiven Flusses in bruchfüllenden Materialien kristalliner Gesteine (Eurad-FUTURE-Projekt) und des Transports in technischen Barrieren und der Kontaktzone (Euratom Cebama, Eurad Magic, sowie MgO und Stroefun BMWi-Projekte). In den Versuchen werden Strömungsfeldtomographie, strukturelle Bildgebung und reaktive Transportmodellierung kombiniert, um das Prozessverständnis zu verbessern und eine Brücke von der molekularen zur makroskopischen Skala zu schlagen.

Die Vorteile umfassen:

- Einblick in die zeitliche Stabilität und räumliche Heterogenität des beobachteten Transportprozesses
- Parametrisierung der lokalen Geschwindigkeitsverteilung und des effektiven Volumens, Vergleichbarkeit mit Porenskalamodelsimulationen
- Möglichkeit, mehrere interne Transportraten zu quantifizieren, ohne das verzögerte Ausgangssignal registrieren zu müssen
- Transparente und tastbare Visualisierung von im opaken Material verborgenen Prozessen

Die Methode erfordert spezifische Randbedingungen des Versuchsaufbaus (Größe, Flüssigkeitsdruck, Temperatur). Dennoch bietet sie einzigartige Einblicke in reaktive Transportprozesse, die in potenziellen Materialien für die Entsorgung nuklearer Abfälle beobachtet wurden.

**Financial support.** This research has been supported by the Bundesministerium für Bildung und Forschung (BMBF, grant no. 02NUK053B), the Bundesministerium für Wirtschaft und Energie in collaboration with the Helmholtz-Gemeinschaft HGF (BWi, grant nos. 02E11748B and 02E11769B), and the Horizon 2020 5 (grant nos. Cebama (662147) and EURAD (847593)).

## References

- Kulenkampff, J., Gründig, M., Zakhnini, A., and Lippmann-Pipke, J.: Geoscientific process monitoring with positron emission tomography (GeoPET), *Solid Earth*, 7, 1217–1231, <https://doi.org/10.5194/se-7-1217-2016>, 2016.
- Kulenkampff, J.: Taking profit from molecular sensitivity on the macro scale: application of PET for investigating transport processes in barrier material, *Geophysical Research Abstracts*, Vol. 20, EGU2018-8813-1, 2018.