



GEOFORSCHUNGSZENTRUM POTSDAM
STIFTUNG DES ÖFFENTLICHEN RECHTS

Scientific Technical Report

Ulfert Seipold

**Der Wärmetransport in kristallinen
Gesteinen unter den Bedingungen der
kontinentalen Kruste**

**Heat Transfer in Crystalline Rocks under
the Conditions of the Continental Crust**

Scientific Technical Report STR01/13

STR01/13; U. Seipold, Wärmetransport in kristallinen Gesteinen

Impressum

GeoForschungsZentrum Potsdam
Telegrafenberg
D-14473 Potsdam

e-mail: postmaster@gfz-potsdam.de

www: <http://www.gfz-potsdam.de>

Gedruckt in Potsdam

November 2001

Zusammenfassung

In dem vorliegenden Heft sind die Ergebnisse langjähriger Untersuchungen der thermischen Transporteigenschaften von kristallinen Gesteinen zusammenfassend dargestellt. Die für die Messungen entwickelten Messmethoden sind detailliert beschrieben. Zur Simulation der Bedingungen innerhalb der Erdkruste wurden die Untersuchungen in Abhängigkeit von Druck und Temperatur durchgeführt. Unter hydrostatischen Bedingungen wurden Drücke bis 1000 Mpa erreicht, bei quasihydrostatischem Druck bis 1500 Mpa. Es wurden Temperaturen bis 1000 °C erreicht.

Die Ergebnisse zur Temperaturabhängigkeit wurden unter Berücksichtigung verschiedener Leitungsmechanismen ausgewertet. Dadurch werden Aussagen über deren Bedeutung erhalten. Insbesondere wird der Einfluss des radiativen Wärmetransports diskutiert. Für die untersuchten Gesteinstypen (Granite, Gneise, Amphibolite, felsische und mafische Granulite, Serpentine, Peridotite) werden mittlere Kurven der Temperaturabhängigkeit von Wärme- und Temperaturleitfähigkeit angegeben. Von anderen Gesteinen wurden kleinere Probenzahlen untersucht. Es wurde versucht, die charakteristischen Merkmale der Temperaturabhängigkeit verschiedener Gesteine herauszuarbeiten.

Die Druckabhängigkeit wird in einen nichtlinearen Anfangsbereich und den Bereich linearer Abhängigkeit etwa oberhalb 100 Mpa gliedert. Für den Anfangsbereich werden erstmals statistisch abgeleitete quantitative Ergebnisse angegeben. Im linearen Druckbereich wird das Verhalten durch Angabe der mittleren Druckkoeffizienten für die verschiedenen Gesteine beschrieben.

Die Messergebnisse der Druck- und Temperaturabhängigkeit werden dazu benutzt, die Variation der Wärmeleitfähigkeit innerhalb der kontinentalen Kruste bei Vorgabe verschiedener Temperatur-Tiefen-Funktionen zu berechnen.

Es wurden die Wirkungen von verschiedenen Effekten (Phasenübergänge, Dehydration, partielles Schmelzen) auf den Wärmetransport untersucht. Ein erstmals beobachteter Leitungsmechanismus beeinflusst erheblich das Verhalten von Gesteinen, in denen bei hoher Temperatur Wasser freigesetzt wird.

Summary

The content of this paper are the results obtained over many years in studies of the thermal transport properties of crystalline rocks. The measuring methods and equipments developed for these investigations are in detail described. The measurements were performed in dependence on temperature respectively pressure to simulate the conditions within the earth's crust. Pressure up to 1000 Mpa was used under hydrostatic conditions whereas a pressure of 1500 Mpa was reached in a quasihydrostatic device. The maximal temperature was 1000 °C.

The results obtained for the thermal conductivity and the thermal diffusivity in dependence on temperature were processed taking into account various mechanisms of heat conduction .This way information concerning the influence of the mechanisms was obtained. Especially the importance of the radiative heat transport is discussed. Mean curves for the temperature dependence of the thermal conductivity are given for the investigated rock types (granite, gneiss, felsic and mafic granulite, serpentinite and peridotite). For other rocks a smaller number of samples was measured. It was tried to find the characteristic features for the temperature dependence of the various rocks.

The curves for the pressure dependence of the thermal transport parameters were subdivided in the nonlinear initial range and the range over about 100 Mpa with a nearly linear pressure dependence. For the initial range the statistical distribution is given for the increase of the thermal transport parameters with rising pressure. For the linear range the mean pressure coefficients were calculated for the studied rocks.

The obtained results for the pressure and temperature dependence of the thermal conductivity for representative crustal rocks were used to calculate the variation of the thermal conductivity within the crust assuming various geotherms.

The influence of various processes (phase transitions, dehydration reactions, partial melting) on the thermal transport properties was tested. A new conduction mechanism was observed in dehydrating rock samples.

Der Wärmetransport in kristallinen Gesteinen unter den Bedingungen der kontinentalen Erdkruste

Inhaltsverzeichnis

| | Seite |
|--|-------|
| 1. Mechanismen des Wärmetransport in der festen Erde und ihre quantitative Erfassung | 7 |
| 1.1 Beschreibung der eingesetzten Messmethoden zur Bestimmung von Wärme- und Temperaturleitfähigkeit | 10 |
| 1.2 Das modifizierte Impulsverfahren | 12 |
| 1.3 Untersuchungsmethodik bei hohen Temperaturen | 22 |
| 1.4 Untersuchungsmethodik bei hohen Drucken | 30 |
| 2 Ergebnisse der Hochtemperaturuntersuchungen | 37 |
| 2.1 Vergleich der Temperaturabhängigkeit der thermischen Transportparameter verschiedener Gesteine | 37 |
| 2.2 Untersuchungen an Serpentiniten: Die Wirkung der Dehydration auf die thermischen Transportparameter | 41 |
| 2.3 Temperaturabhängigkeit der thermischen Leitfähigkeiten bei Anorthositen | 49 |
| 2.4 Der Einfluss von strukturellen Phasenübergängen auf die thermischen Transportparameter | 51 |
| 2.5 Der Einfluss partiellen Schmelzens auf die thermischen Transporteigenschaften | 53 |
| 2.6 Beiträge des radiativen Wärmetransports | 54 |
| 3 Ergebnisse der Hochdruckuntersuchungen | 67 |
| 3.1 Untersuchungen der Druckabhängigkeit der thermischen Transportparameter bei hydrostatischen Bedingungen | 67 |
| 3.2 Ergebnisse der Hochdruckuntersuchungen zur Temperaturabhängigkeit der Temperaturleitfähigkeit bei quasihydrostatischen Bedingungen | 76 |
| 3.3 Hochdruckuntersuchungen an thermisch gecrackten Graniten | 84 |
| 4 Die Verteilung der thermischen Transportparameter in der Erdkruste | 90 |
| 5 Literaturverzeichnis | 101 |
| 7. Anhang | 111 |
| Die Datenbank Petrophysics 97 (Charakterisierung der untersuchten Proben) Ergebnistabellen | |

Heat Transfer in Crystalline Rocks under the Conditions of the Continental Crust

Content

| | Page |
|--|------|
| 1. Mechanisms of heat transfer in the solid Earth and its quantitative description | 7 |
| 2. Description of the used measuring methods for the determination of thermal diffusivity and thermal conductivity | 10 |
| 2.1 The modified pulse method | 12 |
| 2.2 Measuring methods at high temperatures | 22 |
| 2.3 Measuring techniques at high pressure | 30 |
| 3. Results of the investigations at high temperatures | 37 |
| 3.1 Comparison of the temperature dependence of the thermal transport parameters for various rocks | 37 |
| 3.2 Investigations of serpentinites: The effect of the dehydration on the thermal transport parameters | 41 |
| 3.3 Temperature dependence of the thermal transport parameters for anorthosites | 49 |
| 3.4 The influence of structural phase transitions on the thermal transport parameters | 51 |
| 3.5 The influence of partial melting on the thermal transport properties | 53 |
| 3.6 Contributions of the radiative heat transfer | 54 |
| 4. Results of the investigations at high pressure | 67 |
| 4.1 Investigations of the pressure dependence of the thermal transport parameters under hydrostatic conditions | 67 |
| 4.2 Results of the high pressure investigations of the temperature dependence of the thermal diffusivity under quasihydrostatic conditions | 76 |
| 4.3 High pressure investigations of thermal cracked granites | 84 |
| 5. The distribution of the thermal transport parameters in the Earth's crust | 90 |
| 6. References | 101 |
| 7. Appendix | 111 |
| The database Petrophysics 97 (Characterisation of the investigated rocks) Tables of results | |

1. Mechanismen des Wärmetransport in der festen Erde und ihre quantitative Erfassung

Der Wärmetransport in der Erde kann durch verschiedene Mechanismen erfolgen:

durch Wärmeleitung innerhalb des festen Gesteins,

durch natürliche oder forcierte Konvektion innerhalb des Porenraums, in Störungszonen, innerhalb von Kluftsystemen oder verbunden mit Magmenbewegungen,

durch elektromagnetische Strahlung. Zur Quantifizierung des Wärmetransportes wird die vektorielle Grösse Wärmestromdichte q (heat flow density) benutzt, definiert als Quotient von transportierter Energie / (Fläche x Zeit) in einer bestimmten Richtung.

Bei Vernachlässigung der Vorgänge im Porenraum erfolgt der Wärmetransport in niedrig porösen Gesteinen und bei nicht zu hohen Temperaturen wesentlich durch Wärmeleitung. In diesem Fall gilt das Erfahrungsgesetz, dass die Wärmestromdichte q proportional zum Temperaturgradienten ist, der den Wärmestrom antreibt (Fouriersches Gesetz):

$$(1) \quad q = -\lambda * \text{grad } T$$

Die hier auftretende Konstante λ ist ein Mass für das Vermögen des betreffenden Gesteins, Energie zu transportieren und wird deshalb als Wärmeleitfähigkeit bezeichnet. In anisotropen Gesteinen (z. B. Gneis, Peridotit) muss anstelle der skalaren Wärmeleitfähigkeit ein symmetrischer Tensor 2. Stufe eingeführt werden. Der Wärmestromdichtevektor hat dann nur noch in der Richtung der Hauptachsen des Wärmeleitungstensors die gleiche Richtung wie der Temperaturgradient.

Es hat sich als zweckmässig erwiesen, als zweiten thermischen Transportparameter die Temperaturleitfähigkeit K einzuführen. Sie wird durch die Wärmeleitungsgleichung

$$(2) \quad \text{div grad } T = 1/K * \partial T / \partial t$$

definiert und ist ein Mass dafür, wie schnell sich eine Temperaturänderung in einem Gestein ausbreitet. Entsprechend dieser Definition tritt sie besonders bei der Behandlung zeitabhängiger thermischer Vorgänge in Erscheinung. Für homogene isotrope Festkörper lässt sich ableiten, dass zwischen Wärme- und Temperaturleitfähigkeit die häufig benutzte Debye-Gleichung

$$(3) \quad \lambda = c * \rho * K$$

besteht. Da Gesteine heterogene Festkörper sind, gilt die Beziehung (3) für sie streng genommen nicht. Einige Autoren vermeiden dieses Problem dadurch, dass sie die Beziehung (3) als Definitionsgleichung für die Temperaturleitfähigkeit betrachten und damit ihre Gültigkeit per Definition festsetzen. Mit einer so eingeführten Temperaturleitfähigkeit wird aber die Gültigkeit der Wärmeleitungsgleichung (2) fraglich. Da diese Differentialgleichung die Basis der

gesamten phänomenologischen Theorie der Wärmeausbreitung ist, sind die Folgen einer solchen Betrachtungsweise unabsehbar. Wir bevorzugen daher, Beziehung (3) als für Gesteine nur näherungsweise gültig zu betrachten mit der Aussicht, sie später bei Vorliegen von genügend experimentellen Ergebnissen durch eine verbesserte Beziehung zu ersetzen. Diese Ergebnisse müssten unter Benutzung der Gleichungen (1) und (2) bei der Datenverarbeitung unter strikter Vermeidung von (3) gewonnen werden. Das ist kein triviales Problem, weil bei der Ableitung der Auswertungsalgorithmen bei vielen thermischen Messverfahren an irgendeiner Stelle die Gleichung (3) benutzt wird. Dieses ganze Problem hängt inhaltlich sehr eng mit der Aufgabe zusammen, für ein heterogenes Material effektive Materialparameter einzuführen. Ebenso wie bei anderen petrophysikalischen Parametern werden genau genommen zur Quantifizierung der Wärmetransporteigenschaften der Gesteine effektive Parameter benutzt. Das bedeutet, dass dem heterogenen Gestein diejenige Wärmeleitfähigkeit zugeordnet wird, die ein homogenes Material hätte, das in einer bestimmten Messanordnung bei einer repräsentativen Probengrösse bei gleichen Messbedingungen das gleiche Wärmeleitvermögen aufweist, also gleiche Wärmeflussdichte bei einem gegebenen Temperaturgradient. Es ist eine Reihe so genannter Mischungsregeln abgeleitet worden, die es gestatten, allein aus den Mineralanteilen und den Wärmeleitfähigkeiten der einzelnen Minerale unter völliger Vernachlässigung von Struktur und Textur der aktuellen Probe deren effektive Wärmeleitfähigkeit näherungsweise zu berechnen. Da entsprechend (2) die Temperaturleitfähigkeit für eine nichtstationäre Temperatursausbreitung definiert ist, macht die Übertragung des obigen Gedankenganges zur Einführung einer effektiven Temperaturleitfähigkeit grosse Probleme (Kerrick 1971 und 1972, Gobbe und Quintard 1994). Es ist dabei bewusst geworden, dass die Definition immer auf eine bestimmte Messanordnung bezogen ist.

Wärmetransport durch Konvektion ist durch den gleichzeitigen Transport von Masse und Energie charakterisiert, setzt also ein sich bewegendes (im folgenden fliessendes) Medium voraus. Da die transportierte Energie wesentlich von der Geschwindigkeit des transportierenden Mediums (Porenfluid, Kluffüllung, Schmelze) abhängt und nur mittelbar von Gesteinseigenschaften wie der Permeabilität beeinflusst wird, kann der Effekt nicht durch einen gesteinspezifischen Parameter quantifiziert werden. In diesem Sinne ist die Behandlung der Konvektion nicht Gegenstand der Petrophysik. Es gibt jedoch die Grenzfälle, dass bei sehr grossen Poren und in Klüften bei Messungen der Wärmeleitfähigkeit im gesättigten Zustand die Porenfüllung in Bewegung gerät und dadurch die Wärmeleitfähigkeit vergrössert erscheint. Dieser zusätzliche Beitrag wird auch vom eingesetzten Messverfahren abhängig sein, er ist klein bei einem schnellen transienten Verfahren und gross bei stationären Verfahren mit

langer Wartezeit bis zur Einstellung des thermischen Gleichgewichts. Eine spezielle Variante des konvektiven Transports wurde von uns bei Serpentiniten beobachtet.

Der Wärmetransport durch elektromagnetische Strahlung wird entsprechend dem Stefan-Boltzmann-Gesetz zunehmend bei hohen Temperaturen erwartet. Bei Gesteinen spielen dabei auch die spektralen Absorptions- und Streuungseigenschaften und ihre Variation mit der Temperatur eine grosse Rolle. Nur wenn die experimentellen Bedingungen so gewählt sind, dass auch bei diesem Transportmechanismus die Wärmestromdichte wesentlich vom Temperaturgradienten abhängt, dann kann er durch einen zusätzlichen Beitrag zur Wärmeleitfähigkeit berücksichtigt werden (Diffusionsnäherung). Diese Bedingung ist bei genügend grossen Gesteinsproben realisiert.

Die ohnehin schon komplexe Situation bei Gesteinen wird weiter dadurch kompliziert, dass durch mechanische und thermische Belastungen, denen jeder Gesteinskörper im Verlaufe seiner Evolution ausgesetzt war, eine mehr oder weniger grosse Zahl von Rissen und Klüften gebildet worden ist. Sie können zum Zeitpunkt der Untersuchung offen oder geschlossen sein und bezogen auf die einzelnen Mineralkörner intra- oder intergranular verlaufen. Oft sind sie über geologische Zeiträume wieder verheilt, d. h. mit einer dichten, eventuell sogar kristallinen Füllung versehen. Für den Wärmetransport sind sie in jedem Fall als ein zusätzliches Hindernis zu betrachten. Auch geschlossene Risse stellen eine Unterbrechung des regulären Kristallaufbaus dar und sind somit ein flächenhaftes Streuzentrum für Phononen. Offene Risse müssen dagegen ganz anders von einem makroskopischen Standpunkt betrachtet werden. Offene Risse mit einer Gasfüllung, normalerweise mit Luftfüllung, sind wegen der sehr niedrigen Wärmeleitfähigkeit der Gase ein nebenswertes Hindernis für den Wärmetransport. Deshalb kann sich bei Sättigung des Gesteins mit Wasser, das unter den Flüssigkeiten eine der höchsten Wärmeleitfähigkeiten hat ($0,6 \text{ W/(m}^*\text{K)}$), die Wärmeleitfähigkeit einer klüftigen Probe erheblich vergrössern. Die Wirkung eines Risses auf den Wärmetransport hängt auch stark von seiner geometrischen Form ab, die man durch das aspect ratio erfassen kann, wenn man die Risse entsprechend dem Penny-Shape-Modell idealisiert.

Insgesamt gesehen haben wir beim Wärmetransport in Gesteinen einmal Faktoren zu berücksichtigen, die durch die Eigenschaften und den Anteil der beteiligten Minerale bedingt sind, und zum anderen mit etwa gleicher Wertigkeit Einflüsse, die aus der Struktur der speziellen Gesteinsprobe resultieren. Es ist daher zu erwarten, dass die Proben einer bestimmten Gesteinsklasse in ihren thermischen Parametern über einen mehr oder weniger grossen Bereich streuen werden. Regionale Einflüsse können sich über beide Richtungen auswirken. Letztlich ist es aber überraschend, dass trotz der hohen Zahl beeinflussender Faktoren die Werte der

thermischen Transportparameter für die meisten Gesteine in einem relativ engen Intervall liegen. Die individuell unterschiedlichen strukturellen Einflüsse sind auch die Ursache dafür, dass Zusammenhänge der thermischen Transportparametern mit anderen petrophysikalischen Parametern, wie den elastischen Wellengeschwindigkeiten, bei Mineralen in gewissem Umfang zu beobachten sind, während bei Gesteinen jedoch meist nur sehr geringe Korrelationen bestehen. Die für alle Exemplare einer bestimmten Gesteinsklasse ähnliche mineralogische Zusammensetzung muss wegen des grossen Einflusses struktureller Effekte nicht zu ähnlichen Werten der thermischen Parameter führen. Die hier gewählte Formulierung „strukturelle Effekte“ ist nicht allein im engeren Sinn einer kristallografischen Struktur zu verstehen, sondern soll die Wirkung aller Besonderheiten umfassen, die etwa in der Geologie in den Begriffen Struktur und Textur zusammengefasst sind, aber auch vom festkörperphysikalischen Standpunkt gesehen alle in der Realstruktur auftretenden kristallografischen und chemischen Störstellen ebenso wie makroskopische Störungen, Inhomogenitäten, Auslösungslamellen, Zwillingsflächen, Korngrenzen usw. berücksichtigen. Bei Mineralen, insbesondere bei Einkristallen, ist die Bedeutung der strukturellen Effekte sicher geringer, er ist aber auch nicht verschwindend klein. Deshalb muss man damit rechnen, dass auch für Minerale die Werte der thermischen Parameter in gewissen Grenzen variieren, abhängig von der Perfektion der Kristallstruktur. Weiter ist zu berücksichtigen, dass bei vielen Mineralen, wie z. B. bei Hornblende, die chemische Zusammensetzung in weiten Grenzen variieren kann und damit auch die thermischen Transportparameter. An diese Probleme ist zu denken, wenn man versucht, die effektive Wärmeleitfähigkeit eines Gesteins mit Hilfe von Mischungsregeln aus den Wärmeleitfähigkeiten der Mineralkomponenten zu berechnen. Hierbei ist es manchmal sinnvoll, empirische Werte für die Komponenten zu benutzen anstelle von Werten, die an fast perfekten Einkristallen gemessen worden sind. Die obigen Betrachtungen schliessen jedoch nicht aus, dass es eine Reihe von Mineralen gibt, wie Bergkristall, bei denen die Kristallperfektion so hoch ist, dass die Streuung der Werte der thermischen Parameter genügend gering ist, so dass ihre Benutzung als Standards akzeptabel ist.

2. Beschreibung der eingesetzten Mess- und Auswertungsmethoden zur Bestimmung der thermischen Transportparameter

Im Laufe der Zeit war eine grosse Zahl unterschiedlicher Messmethoden zur Bestimmung der thermischen Leitfähigkeiten im Einsatz, angepasst an die verschiedenen Aufgabenstellungen und die zur Verfügung stehenden Möglichkeiten der Erzeugung hoher Drucke und Tempera-

turen. Es gibt wohl keine andere physikalische Grösse, für die sich so viele unterschiedliche Messmethoden erdenken lassen, wie für Wärme- und Temperaturleitfähigkeit. Sie unterscheiden sich hinsichtlich der Probengeometrie, des zeitlichen Regimes und der räumlichen Verteilung des Temperaturfeldes, dh. letztlich in den Anfangs- und Randbedingungen, die bei der Lösung der Wärmeleitungsgleichung zusätzlich zu berücksichtigen sind.

Wenn man sich speziell die Aufgabe stellt, die thermischen Transportgrößen an Gesteinsproben bei möglichst realistischer Simulation der Bedingungen in der Erdkruste zu bestimmen, so ergeben sich daraus erhebliche Einschränkungen, die bei der Auswahl der Messmethode zu berücksichtigen sind:

Die Messungen müssen bei hohen Temperaturen und den für die verschiedenen Teufen charakteristischen Druck- bzw. Spannungsverhältnissen erfolgen. Sehr hohe Drücke und homogene Temperaturfelder lassen sich experimentell nur innerhalb relativ kleiner Volumina erzeugen. Heizer und Temperatursensoren müssen daher klein sein, sollen möglichst wenig Zuleitungen erfordern und müssen den hohen Drücken und Temperaturen standhalten.

Die Meßmethode muß den für Gesteinsproben typischen Besonderheiten Rechnung tragen. Gesteine sind heterogene und teilweise auch anisotrope Festkörper, für die bereits in der Definition der Meßgrößen ein Problem liegt. Die Abmessungen des Probenkörpers müssen so gewählt werden, dass durch Mittelung über die Wirkungen einer ausreichend grossen Zahl von Mineralkörnern die gesuchte effektive Wärme- bzw. Temperaturleitfähigkeit erhalten wird.

Bei Gesteinen ist die Herstellung der Probenkörper nicht ganz einfach. Mit den zu diesem Zweck eingesetzten Diamantwerkzeugen lassen sich mit akzeptablem Aufwand nur einfache Probengeometrien realisieren (Zylinder, Scheiben, Würfel, Quader). Die Möglichkeiten, Heizelemente und Temperatursensoren im Probeninneren unterzubringen, sind sehr begrenzt.

Messungen der thermischen Transportparameter sind wegen der langsamen Einstellung der thermischen Gleichgewichte meist zeitaufwendig. Wenn außerdem Druck und Temperatur über möglichst große Bereiche variiert werden sollen, so daß viele Meßwerte an der gleichen Probe zu bestimmen sind, muß durch die Wahl einer günstigen Methode und die Optimierung der Probengröße ein Kompromiß gefunden werden, der den Zeitaufwand auf einem akzeptablen Wert hält.

Die Messmethode muss dem zu erwartenden Wert der Wärmeleitfähigkeit angepasst sein. Bis auf seltene Ausnahmen liegt die Wärmeleitfähigkeit für die meisten Gesteine im Bereich zwischen 0,5 und 10 W/m*K, wobei ein hoher Prozentsatz sich noch enger im Bereich von 1 bis 5 W/m*K konzentriert. Dieser Wertebereich entspricht etwa dem für dielektrische Festkörper.

Das Meßverfahren sollte gleichzeitig Wärme- und Temperaturleitfähigkeit liefern (oder Wärmeleitfähigkeit und spezifische Wärme).

Die obige Aufzählung läßt erkennen, daß die verschiedenen Gesichtspunkte teilweise zu kontroversen Bedingungen führen, insbesondere bezüglich der Probengröße. Es wird auch bereits deutlich, daß einÜbernahme der unter Normalbedingungen bei der Untersuchung von Gesteinsproben angewendeten Methoden die Erfüllung der spezifischen Hochdruck-Hochtemperatur-Bedingungen verhindert. Das von Bäckström und Mitarbeitern bei hohen Drücken hauptsächlich bei anorganischen Ionenverbindungen eingesetzte Hot-Wire-Verfahren (Bäckström 1985, Andersson et al. 1986) ist dagegen für Gesteine wegen deren bei Umgebungstemperatur ungünstiger mechanischer Fliesseigenschaften nicht geeignet. Ausserdem ist die Anwendbarkeit des hot-wire-Verfahrens in der Version der Umea-Gruppe zu hohen Temperaturen wegen der hier angewendeten äusseren Heizung sehr begrenzt (etwa 300°C). Insgesamt gesehen gibt es kein Messverfahren, das alle obigen Kriterien erfüllt oder sich sonst als inoffizieller Standard durchgesetzt hätte. Vielmehr zeigt die Literatur, dass die verschiedenen Autoren oft unterschiedliche Verfahren anwenden oder neu entwickeln. Viele neuentwickelte Methoden wurden nur einmalig angewendet. Früher war man bei der Wahl der Messmethoden wesentlich auf die mit solchen Anfangs- und Randbedingungen beschränkt, die zu relativ einfachen analytischen Lösungen der Wärmeleitungsgleichung führten (Carslaw und Jäger 1959). Jetzt hat die Entwicklung der Computertechnik den breiten Einsatz numerischer Lösungsmethoden möglich gemacht (Kreith 1973). Ebenso sind bei der Versuchssteuerung, Datenerfassung und -verarbeitung durch den Einsatz computergestützter Systeme enorme Fortschritte gemacht worden, die völlig neue Wege bei der Methodenentwicklung eröffnen (z. B. Popov et al. 1985).

2.1 Das modifizierte Impulsmessverfahren

Die Mehrzahl unserer Messungen wurde unter Benutzung eines modifizierten Impulsverfahrens durchgeführt. Prinzip siehe Abb. (1). Es werden dabei zylindrische Proben benutzt, so dass eine optimale Anpassung an die Geometrie einer Druckkammer gegeben ist. In der Achse des Probenzylinders befindet sich ein Heizdraht. Er wird durch Zuführung eines elektrischen Impulses von 3 s Länge aufgeheizt und erzeugt in der Probe einen Wärmeimpuls, der sich radial ausbreitet. Etwa auf der Mitte zwischen Heizdraht und Probenrand befindet sich in genau bekanntem Abstand ein Thermoelement. Mit seiner Hilfe wird der zeitliche Verlauf des Temperaturimpulses an diesem Ort bestimmt. Aus dieser gemessenen Temperaturkurve werden als charakteristische Grössen die Impulsamplitude T_M und die sog. Halbwertszeit t_H ent-

nommen. Dabei ist als Halbwertszeit die Zeit definiert, die vom Start des Sendeimpulses bis zum Erreichen der halben Impulshöhe des Empfangsimpulses vergeht. Beide Grössen lassen sich aus der gemessenen Temperaturkurve mit relativ hoher Genauigkeit bestimmen.

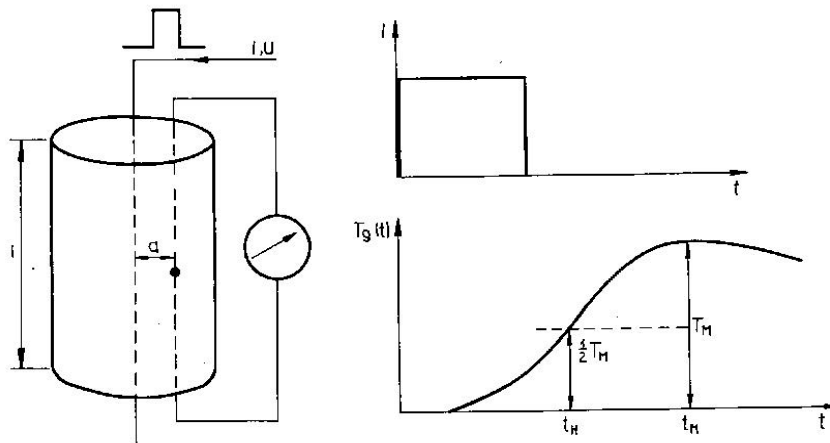


Abb. 1: Prinzip der Impulsmessmethode

Die Theorie der Wärmeausbreitung um eine Linienquelle im unendlichen Medium bei Anregung mit einem Deltaimpuls (Carslaw und Jaeger 1959) wurde auf den Fall der Anregung mit einem Impuls endlicher Länge erweitert. Aus den numerischen Ergebnissen wurden Beziehungen zwischen den gesuchten Materialparametern Wärme- und Temperaturleitfähigkeit einerseits und den aus dem Experiment bestimmbaren Grössen T_M und t_H andererseits abgeleitet. Diese Relationen werden für die Auswertung benutzt. Die Temperaturleitfähigkeit ergibt sich aus der Halbwertszeit und dem Abstand R zwischen Heizdraht und Thermoelement zu

$$K = R^2 / (10,77 * t_H - 16,55) , t_H \text{ in s, } R \text{ in m.}$$

Zur Berechnung der Wärmeleitfähigkeit sind zusätzlich die Heizerlänge HL , Impulshöhe T_M und die Energie Q des Heizimpulses erforderlich:

$$\lambda = 2,652 * Q * (0,3323 - 0,1834/t_H + 21,94/t_H^2) / (HL * T_M),$$

mit Q in Ws , HL in mm und T_M in K . Mehr Einzelheiten sind bei (Seipold 1988) veröffentlicht.

Messplatz zur Bestimmung der thermischen Transportparameter mit dem modifizierten Impulsverfahren

Zur praktischen Realisierung des oben beschriebenen Messprinzips wurde ein Messplatz unter wesentlicher Benutzung eines Datenerfassungssystems Keithley 500A aufgebaut. Dieses System besteht aus den Komponenten Interfacekarte 500-IBIN-A, Analogeingangs-A/D-Modul AMM2, Digital-Ein- und -Ausgabe DI01 sowie dem Analogausgangsmodul AOM5 und ist in

einem separaten Gehäuse mit eigener Stromversorgung untergebracht, um Störeinflüsse durch den Computer zu vermeiden. Das Blockschaltbild ist in der folgenden Abb. (2) dargestellt:

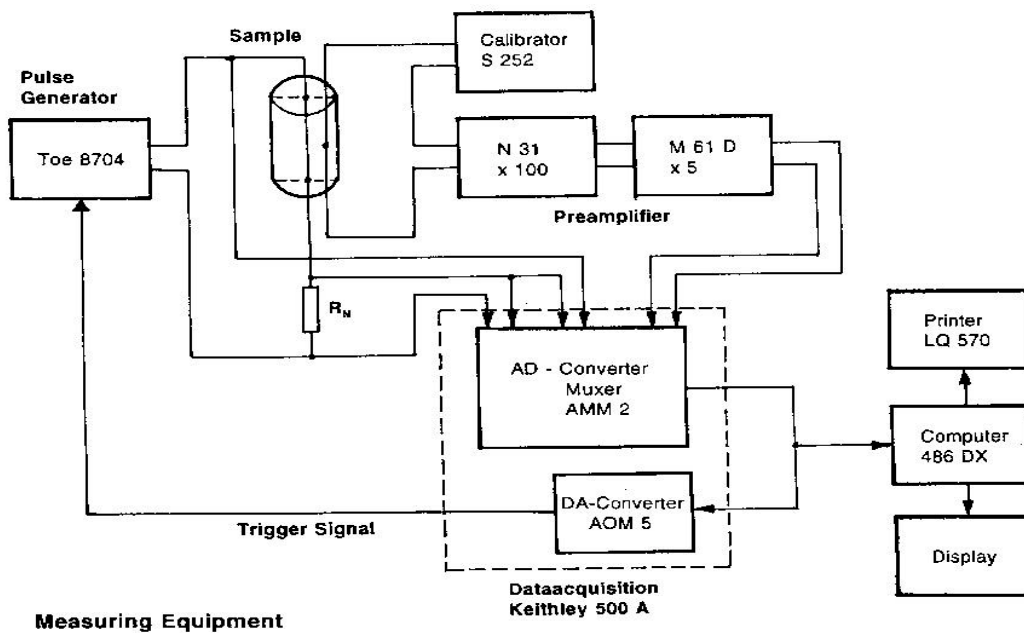


Abb.2: Blockschaltbild der Messanordnung

Heizimpulse bis 10 A können durch ein von aussen steuerbares Gleichstromnetzgerät der Firma Toellner , Typ Toe 8704, erzeugt werden. Die Ansteuerung erfolgt über einen DA-Converter im Datenerfassungssystem. Beim Durchgang des Wärmeimpulses entsteht im Thermoelement ein proportionales elektrisches Signal mit einer Amplitude kleiner als 100 Mikrovolt. Zur Anpassung an den Eingangsspannungsbereich der 16-Bit-AD-Wandler-Karte AMM2, der bei der empfindlichsten Einstellung bei ± 100 mV liegt, wird das Thermosignal durch zwei in Reihe geschaltete Vorverstärker um den Faktor 500 verstärkt. Der eingesetzte Mikrovoltvorverstärker N31 der Firma Knick wurde unter Berücksichtigung seiner günstigen Rauscheigenschaften und des niedrigen Störspannungspegels ausgewählt.

Bei den Messungen bei hoher Temperatur ist dem eigentlichen Messimpuls mit einer Amplitude kleiner als 100 Mikrovolt die konstante Thermospannung überlagert, die der Ofentemperatur entspricht. Sie beträgt maximal etwa 40 mV, so dass die Summe beider Spannungen die Verstärker total übersteuern würde. Deshalb ist in den Eingangskreis des Vorverstärkers ein Kalibrator der Firma Knick, Berlin, Typ S 252 ,eingefügt, an dem bei jeder Temperatur eine entsprechende Spannung eingestellt wird, mit der der konstante Thermospannungsanteil kompensiert wird, so dass die verstärkte Spannungsdifferenz in den nutzbaren Eingangsspannungsbereich des AD-Wandlers passt. Auf diese Weise kann die volle Auflösung des AD-Wandlers über den ganzen Temperaturbereich für das Messsignal genutzt werden.

Bei der Auswertung wird zur Bestimmung der Messtemperatur die Kompensationsspannung in den äquivalenten Temperaturwert zurückgerechnet.

Von dem Datenerfassungssystem werden drei Kanäle genutzt. Ein Kanal dient zum Abscannen der verstärkten Signalthermospannung. Mit den beiden anderen Kanälen werden die Spannung und die Stromstärke des Heizimpulses registriert. Dazu wird aus der Stromstärke mit Hilfe des Widerstandes R_N eine proportionale Spannung gewonnen. Der Messplatz wird mit einem 486DX-Computer mit dem Betriebssystem MS DOS betrieben. Für die Erfassung und Bearbeitung der relativ langsamen thermischen Vorgänge ist die Leistungsfähigkeit dieses Rechners völlig ausreichend. Seine Stabilität lässt keine Wünsche offen.

Mess- und Auswertungsprogramm

Zur Steuerung des Versuchsablaufs, für die Erfassung und Bearbeitung der Daten bis zur Berechnung von Wärme- und Temperaturleitfähigkeit sowie zum Ausdruck und zur Abspeicherung der Ergebnisse wurde das Programm Ftest4.txt in der Programmiersprache ASYST2.0 entwickelt. Die Programmiersprache ASYST wurde gewählt, weil sie gleichzeitig komfortable Werkzeuge zur Programmierung der Datenerfassung, zur Bearbeitung der Meßdaten (digitale Filterung, Extremwertbestimmung, Integration), zur grafischen Darstellung und zur Datenanalyse (Fitprogramm) zur Verfügung stellt. Die Bearbeitung von Datenfeldern läßt sich sehr kompakt programmieren. Nur die polnische Notation ist gewöhnungsbedürftig, obwohl sie eigentlich der tatsächlichen Vorgehensweise bei der Durchführung der verschiedenen Rechenoperationen entspricht. Das Programm druckt am Ende die Auswertungsergebnisse, wichtige Zwischenwerte und Angaben zur Probe und Versuchsparameter in einem kurzen Protokoll aus. Wahlweise können diese Daten auch für eine weitere Verarbeitung digital abgespeichert werden. Das Programm muß zusammen mit einem kleinen Zusatzprogramm mit der Bezeichnung FTest4a.txt benutzt werden, in dem die Bezeichnung und Parameter der aktuellen Probe am Beginn des Versuchs abgefragt und gespeichert werden. Das Programm existiert in zwei Varianten, für Hochtemperaturmessungen (Ftest4t.txt) und zum Einsatz bei Hochdruckuntersuchungen (Ftest4p.txt).

Durch das Datenerfassungssystem Keithley 500A werden die Spannung des Thermoelementes, die Heizspannung und die heizstromproportionale Spannung am Widerstand R_N mit einer Periodendauer von 100 ms abgescannt. Bereits vor der eigentlichen Messung werden über einen Zeitraum von 30 s die Temperaturwerte mit einer Rate von 2/s registriert. Bei der Auswertung wird durch diese Zeit-Temperatur-Wertepaare eine

Ausgleichsgerade gelegt und auf diese Weise für das gemessene Zeitintervall eine mittlere Anfangs- und Endtemperatur T_1 bzw. T_2 bestimmt. Wenn das thermische Gleichgewicht noch nicht erreicht ist, unterscheiden sich T_1 und T_2 . Die Differenz $T_2 - T_1$ wird dann zur Bildung einer entsprechenden Driftkorrektur benutzt. Die Temperatur T_2 wird als Anfangstemperatur bei der Auswertung der Messung benutzt. Durch die Einführung der Driftkorrektur konnten die Versuchszeiten wesentlich reduziert werden, weil nun nicht mehr vor der eigentlichen Messung auf die genaue Einstellung des thermischen Gleichgewichts gewartet werden muss. Gleichzeitig verbesserte sich die Reproduzierbarkeit der Ergebnisse. Sofort nach der Bestimmung der Temperaturdrift wird der Heizimpuls gestartet. Dazu wird vom Rechner über einen D/A-Converter für die Dauer des Impulses durch eine konstante DC-Spannung ein steuerbares Gleichspannungsnetzgerät der Firma Toellner, Typ Toe 8704, aufgesteuert. Die gewünschte Höhe des Heizstromes kann an dem Gerät vorprogrammiert werden, maximal 10 A. Abhängig von der Wärmeleitfähigkeit der zu untersuchenden Gesteinsprobe wird die Energie des Heizimpulses so hoch gewählt, dass am Thermoelement eine Impulsamplitude von etwa 1,5 K auftritt. Die Thermospannung wird über eine Zeit von 70 s gescannt, damit auch noch bei schlechtleitenden Proben das Temperaturmaximum erreicht wird. Die gespeicherten Thermospannungswerte werden geglättet und unter Benutzung des Konversionsfaktors des Thermoelementes (zunächst mit 39 Mikrovolt/K) in entsprechende Temperaturen umgerechnet. Bei den Hochtemperaturversuchen erfolgt die Berücksichtigung der Nichtlinearität der Thermoelementkennlinie erst in einer späteren Stufe der Auswertung unter Benutzung des Programms FDATAFIT.txt, also nicht im Programm Ftest4.txt. Von den Temperaturwerten werden die Anfangstemperatur T_2 und die Driftkorrekturen abgezogen. Die korrigierten Temperaturen werden als Funktion der zugehörigen Zeiten grafisch dargestellt. Durch diese Kontrolle der Impulsform wird dem Experimentator die Gelegenheit gegeben, eventuelle Störungen zu erkennen und gegebenenfalls die Messung abubrechen und zu wiederholen. Danach wird die Maximaltemperatur T_{\max} bestimmt. Es wird dann der Zeitpunkt H_z1 gesucht, bei dem die Hälfte der Maximaltemperatur erreicht wurde. Zur genaueren Bestimmung der Halbwertszeit wird die Temperaturkurve in der Umgebung von H_z1 durch eine Gerade angenähert. Einsetzen von $T_{\max}/2$ in die Geradengleichung liefert dann eine verbesserte Halbwertszeit H_z2 . Zur Bestimmung der Energie des Heizimpulses werden die Produkte der Strom- und Spannungswerte für alle Zeitpunkte gebildet und dann die so erhaltene Leistungskurve über die Zeit integriert (unter Benutzung der Simpsonschen Regel).

Es wurde festgestellt, dass durch den Heizimpuls im Thermoelement eine Störspannung induziert wird, die sich der Thermospannung des Empfangsimpulses überlagert und diesen dadurch im Anfangszeitbereich verfälscht. Zur Behebung dieses Problems wurde der zeitliche Verlauf der Induktionsspannung gemessen. Diese Werte werden bei der Auswertung von dem registrierten Impulssignal abgezogen. Bei der Benutzung von Mantelthermoelementen tritt der Effekt erst bei hoher Temperatur und dann progressiv in Erscheinung, vermutlich infolge der zunehmenden elektrischen Leitfähigkeit des Isoliermaterials MgO. Wegen dieser starken Temperaturabhängigkeit wäre eine Kompensation des Effektes wesentlich komplizierter. Deshalb wurde das Problem durch geeignete Wahl der Versuchsbedingungen umgangen. Die Halbwertszeit muss bei hoher Temperatur ausserhalb des gestörten Bereichs liegen. Dazu muss der Abstand Heizer-Thermoelement genügend gross gewählt werden.

Probenpräparation

Für das Impulsverfahren wurden zylindrische Proben mit 27 mm Durchmesser und 43 mm Länge benutzt. Diese Grössen stellen einen Kompromiß bei der Erfüllung verschiedener teils gegenläufiger Forderungen dar (Verhältnis Korngrösse/Probengrösse, verfügbares Volumen, Messdauer, erreichbare Impulshöhe, Erfüllung der Randbedingung). Das Ausbohren aus geeigneten Gesteinsblöcken und Ablängen ist bei Einsatz kommerzieller Maschinen mit Diamantwerkzeugen ohne Probleme. Allerdings ist darauf zu achten, dass klüftige und anderweitig gestörte oder inhomogene Bereiche vermieden werden. Das wesentlichste Problem bei der Präparation ist das Einbauen des Messheizers und des Thermoelementes. Für den Erfolg der Messungen ist es entscheidend, dass Heizer und Temperatursensor in einem bekannten Abstand genau positioniert sind und dass der thermische Übergangswiderstand insbesondere des Heizdrahtes zum Probenmaterial auf der ganzen Länge möglichst gering ist. Dieser gute Kontakt muss auch bei hoher Temperatur unverändert erhalten bleiben. Es gibt sicher keine perfekte Lösung für diese Aufgabe. Bohrungen sind bei der relativ grossen Probenlänge schwierig zu realisieren. Der Kontakt zwischen Heizer bzw. Thermoelement und der Bohrungswand ist dabei völlig unkontrolliert. Bei der von uns benutzten Variante werden zur Aufnahme der Messelemente mit einer Diamanttrennscheibe sehr dünne (0,5 mm) achsenparallele Schlitze in den Probenzylinder geschliffen. Heizer und Thermoelement werden dann auf dem Boden dieser Schlitze in relativ genau definierter Position einzementiert, wobei durch die Wahl eines geeigneten Zementes und sorgfältiges Füllen auch ein guter Wärmekontakt erreicht werden kann. Die bei dieser Geometrie auftretende Störung des Temperaturfeldes in der Probe ist relativ gering, besonders in der Messrichtung. Die zu

einem gewissen Grad punktuelle Temperaturmessung durch Benutzung eines Thermoelementes kann in speziellen Fällen zu Problemen führen. Z. B. wurden bei der Untersuchung einer Granitprobe ungewöhnlich hohe Wärmeleitungswerte erhalten, weil die Probe eine erhebliche Inhomogenität aufwies und die Messstelle dabei zufällig in einem Cluster von Quarzkörnern lag. Eine Verschiebung des Thermoelementes um etwa 10 mm in axialer Richtung führte sofort zu normalen Werten. Derartige Probleme infolge der Inhomogenität der Mineralverteilung oder durch die Konzentration von wenigen grossen Körnern eines Minerals im unmittelbaren Messweg sind nur durch Untersuchung einer genügend grossen Zahl von Proben zu kontrollieren. Es wurde auch überlegt, eine in axialer Richtung mittelnde Temperaturmessung durch elektrische Widerstandsmessung an einem Nickeldraht einzusetzen. Bei dieser Art der Temperaturmessung würde man aber unkontrollierbare Fehler durch Randeffekte erhalten.

Zur Herstellung der Schlitze wurde eine spezielle Diamantsäge aufgebaut, bei der die Gesteinsprobe in einer Spannvorrichtung in Längsrichtung bei konstanter Schnitttiefe unter dem rotierenden Sägeblatt durchbewegt werden kann. Die Schnitttiefe kann feingestuft vergrössert werden. Durch das Schlitzeln der Probe von entgegengesetzten Seiten verbleibt in der Mitte ein nur etwa 6 bis 7 mm breiter Steg. Besonders bei stark foliierten oder klüftigen Gesteinen besteht hier die Gefahr eines Bruchs.

Messgenauigkeit beim Impulsverfahren

Nach unseren langjährigen Erfahrungen bei der Messung an Gesteinsproben mit verschiedenen Verfahren und unter Berücksichtigung der Ergebnisse vieler anderer Autoren sind wir bezüglich der Einschätzung der Genauigkeit einer Messmethode für thermische Transportparameter zu der Meinung gelangt, dass man mit den bei physikalischen Messmethoden üblichen Fehlerberechnungen zu totalen Fehleinschätzungen kommen kann. Insbesondere ist es völlig wertlos, die Messgenauigkeit für die einzelnen in die Auswertung eingehenden Grössen abzuschätzen oder zu bestimmen und dann mit Hilfe des Fehlerfortpflanzungsgesetzes unter Berücksichtigung der Auswertungsbeziehung den Fehler des Endergebnisse zu berechnen. Die Ursache für die Nichtanwendbarkeit der üblichen statistischen Fehlerberechnung liegt darin, dass der Messfehler entscheidend dadurch bestimmt wird, wie genau die Messbedingungen die bei der theoretischen Ableitung der Auswertungsbeziehung vorausgesetzten Bedingungen erfüllen. Das betrifft Rand- und Anfangsbedingungen sowie Voraussetzungen über thermische Isolationen und Kontaktwiderstände und thermische Gleichgewichte. Es ist auch sehr gut möglich, dass ein

Messverfahren bei Umgebungsbedingungen völlig einwandfreie Ergebnisse liefert, dass aber bei Variation einer Zustandsgrösse wie Druck oder Temperatur sich die Bedingungen kontinuierlich ändern, so dass ein völlig falscher Trend für die Abhängigkeit von der Zustandsgrösse gemessen wird. Wenn z. B. in einer Gasdruckapparatur die Abhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit vom Druck gemessen wird, muss unbedingt berücksichtigt werden, dass sich mit der Zunahme des Druckes die Wärmeleitfähigkeit des Gases, das die zu messende Probe umgibt, um Grössenordnungen ändert, sonst wird eine völlig falsche Druckabhängigkeit erhalten. Bei Hochtemperaturmessungen können mit steigender Temperatur zunehmend Inhomogenitäten des Temperaturfeldes auftreten, die zu einem zunehmenden systematischen Fehler führen. Eine andere Fehlerquelle sind mit steigender Temperatur zunehmende Wärmeverluste durch Konvektion oder Wärmestrahlung. Alle derartigen oft nur schleichend zunehmenden systematischen Fehler sind äusserst schwierig nachweisbar, haben aber eine viel grössere Bedeutung als die statistischen Fehler..

Bei der Untersuchung von Gesteinen ist man mit dem weiteren Problem konfrontiert, dass das Messobjekt erhebliche Inhomogenitäten aufweisen kann. Das hat natürlich zur Folge, dass Probenkörper, die an verschiedenen Stellen von einem Gesteinsblock entnommen worden sind, verschiedene Ergebnisse liefern. Es ist oft schwer abzuschätzen, ob derartige Unterschiede durch die Heterogenität des Gesteins oder durch statistische Fehler der Messmethode bedingt sind. Die Möglichkeit der Inhomogenität muss auch bei allen Vergleichsmessungen mit verschiedenen Apparaturen in Betracht gezogen werden. Viele Gesteine, die auf den ersten Blick homogen erscheinen, weisen räumliche Häufungen (Cluster) einzelner Mineralbestandteile auf. Das benutzte Impulsverfahren ist relativ empfindlich gegenüber derartigen Effekten, weil die Temperatur an der Messstelle durch die thermischen Eigenschaften in einem relativ kleinen Umgebungsvolumen bestimmt wird. Es ist daher trotz des grossen Aufwandes wichtig, mehrere Proben vom gleichen Gestein zu untersuchen.

Vergleichsmessungen fanden mit dem Labor des Geological Survey of Finland in Espoo statt. Dort wurden von jedem von acht finnischen mafischen Granuliten mehrere Proben mit einer divided-bar-Apparatur bei 298 K untersucht. An Proben des gleichen Materials wurden im GFZ in Potsdam die Druck- und Temperaturabhängigkeit gemessen. Für den Vergleich wurde die Druckabhängigkeit auf $p=0$ extrapoliert. Von der Temperaturabhängigkeit wurden die Werte von 287 bis 327 K benutzt.

| <i>Probe</i> | <i>GSF-Wert</i> | <i>GFZ-Temperaturabh.</i> | <i>GFZ-Druck-Extrapolation</i> |
|--------------|-----------------|---------------------------|--------------------------------|
| JJ01 | 2,25 | 2,15 | 2,28 |
| JJ02 | 2,21 | 2,028 | - |
| JJ03 | 2,31 | 2,06 | 2,22 |
| JJ04 | 2,51 | 2,43 | 2,41 |
| JJ05 | 2,34 | 2,23 | - |
| JJ06 | 2,44 | 2,41 | 2,39 |
| JJ07 | 2,03 | 1,99 | 2,43 |
| JJ08 | 2,60 | 2,01 | 2,34 |

Im Rahmen eines Vergleichs der Temperaturabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit für verschiedene Gesteinstypen wurden eigene Messergebnisse und Ergebnisse zur Temperaturabhängigkeit von vielen anderen Autoren im B-A-Diagramm dargestellt (wie unten beschrieben). Wie in unserer entsprechenden Veröffentlichung in *Tectonophysics* 291 (1998) 161-171 dargestellt, ergibt sich mit der zu erwartenden Streuung ein linearer Zusammenhang zwischen den Konstanten A und B bei der Datenbearbeitung mit der Fitfunktion WLF1. Dabei zeigte sich, dass die den linearen Zusammenhang $B=B(A)$ repräsentierende Regressionsgerade für unsere Ergebnisse praktisch identisch war mit der entsprechenden Regressionsgeraden durch die Literaturdaten:

$$A = -(532 \pm 45) \cdot B + (0,488 \pm 0,014), \text{ Korrelationskoeffizient } R = -0,84,$$

für die eigenen Werte, und aus den Literaturdaten

$$A = -(560 \pm 54) \cdot B + (0,447 \pm 0,022), \text{ mit } R = -0,85.$$

Man kann daraus u.a. folgern, dass kein wesentlicher systematischer Unterschied zwischen den bei uns gemessenen Temperaturabhängigkeiten und den von anderen Autoren veröffentlichten besteht. Ein weiterer wichtiger Test war der Vergleich unserer Ergebnisse an KTB-Amphiboliten mit der sehr grossen Zahl von Messwerten (etwa 2000) aus dem KTB-Feldlabor.