

## 4.2 Analys av i vilken mån en långsam återmättnad kan förvärpa försämringar av buffertens materialegenskaper pga. kemiska och strukturella omvandlingar i förhållande till ett fall med snabb återmättnad

### Tillgängliga observationer och pågående studier

Ola Karnland  
Martin Birgersson  
Ann Dueck

Clay Technology November 2013

**Innehåll**

|                                                                                   |   |
|-----------------------------------------------------------------------------------|---|
| Bakgrund .....                                                                    | 3 |
| SKBs nuvarande forskning.....                                                     | 3 |
| Från SKB fristående publikationer med relevanta undersökningar.....               | 6 |
| Sammanfattning av studier med relevans på långsam vattenmättnad av bufferten..... | 8 |
| Referenser.....                                                                   | 8 |

## Bakgrund

Bentoniten i bufferten består av lermineralet montmorillonit samt en mindre andel vanligt förekommande mineral som kvarts, fältspat, gips etc. De tätande egenskaperna hos bentoniten är i allt väsentligt kopplade till montmorilloniten, huvudsakligen genom interaktion mellan montmorillonitens motjoner och vatten. Vanliga motjoner i naturlig bentonit är framförallt  $\text{Ca}^{2+}$ , samt  $\text{Na}^{+}$ . Vid högt vatteninnehåll (låg materialdensitet) påverkas tätningsegenskaperna av vilken motjon som dominerar, medan tätningsegenskaperna är likartade vid lågt vatteninnehåll (hög materialdensitet). Buffertdensiteten är därför planerad att vara tillräckligt hög för att de tätande egenskaperna ska vara oberoende av vilken motjon som dominerar (Karnland 2010).

Generella studier av bentonitomvandling i olika sammanhang, t.ex. allmän sedimentologi och oljeprospektering har pågått under lång tid och en omfattande allmän kunskap finns beskriven i litteraturen. En sammanfattning av kunskapsläget med avseende på bufferten i ett KBS-3 förvar redovisas i Karnland och Birgersson (2006). SKB har i samarbete med Nagra och Posiva därefter genomfört ytterligare undersökningar, och arbetet med en uppdaterad sammanställning av kunskapsläget pågår.

Förhållanden som rör full vattenmättnad av bentonitmaterial har kraftigt dominerat de allmänna forskningsinsatserna, eftersom detta är det vanligt förekommande tillståndet i naturliga system. Även specialiserade studier för ett slutförvar har huvudsakligen berört vattenmättad buffert. Ett fåtal studier som specifikt rör strukturell och/eller mineralogisk omvandling av bentonit under omättade förhållanden har emellertid genomförts, och några studier har även berört de speciella förhållanden som kan komma att råda i ett slutförvar. Långsam vattenmättnad medför i allmänhet att transienta förhållanden och gradienter upprätthålls under en längre tid än vad som är fallet vid en snabb vattenmättnad. Även kvalitativa skillnader kan uppstå vid långsam vattenmättnad, t.ex. om intransporten och därmed fördelningen av vatten i bufferten och tunnelåterfyllnadsmaterialet är snabbare än tillförseln av vatten från berget, vilket då i vissa avseenden leder till mindre uttalade gradienter. Förhållandena kan tänkas påverka buffertegenskaperna i negativ riktning och bland annat har ångpåverkan, bakterieaktivitet, transport och anrikning av lösta specier diskuterats och undersökts i både laboratorieförsök och fältförsök.

## SKBs nuvarande forskning

SKBs nuvarande forskning som helt eller delvis rör långtidseffekter av långsam vattenmättnad innefattas huvudsakligen i det följande.

### Pebsprojektet (EU-projekt, [www.pebs-eu.de](http://www.pebs-eu.de) )

Projektet innefattar laboratorieförsök med fokus på förändringar i bentonitmaterial med avseende på fysikaliska egenskaper som skjuvhållfasthet, töjning vid skjuvning, svälltryck och hydraulisk konduktivitet som följd av kortvarig exponering i förhöjd temperatur (upp till 150°C) med varierande mineralsammansättning. Försöksserien innefattar därmed också olika motjoner i bentoniten. Försöken är avslutade och rapportering pågår. Preliminära resultat som är relevanta för långsam vattenmättnad kan sammanfattas i följande punkter.

- Tendens till förhöjd skjuvhållfasthet har uppmäts efter kortvarig hydrotermal behandling under mättade förhållanden. I prov som hydrotermalbehandlats utan vattentryck var effekterna likartade eller mindre uttalade.
- Signifikanta förändringar av töjningen vid brottlast som följd av kortvarig hydrotermal behandling vid mättade förhållanden. I prov som hydrotermalbehandlats utan vattentryck var effekterna likartade eller mindre uttalade.
- Oförändrade svälltryck som följd av kortvarig hydrotermalbehandling oberoende av vattentryck eller inte.
- Oförändrad hydraulisk konduktivitet som följd av kortvarig hydrotermalbehandling oberoende av vattentryck eller inte.
- Något förlängd vattenmättnadstid för omättade prov som utsatts för hydrotermalbehandling.
- Signifikant minskad skjuvhållfasthet i gamla sprickplan/skjuvplan även efter vattenupptag till full vattenmättnad.

En övergripande slutsats är att effekterna på skjuvnings och tätande egenskaper som följd av temperaturpåverkan är likvärdiga, eller mindre uttalade, i prov som hydrotermalbehandlats utan vattentryck i jämförelse med prov som varit helt vattenmättade.

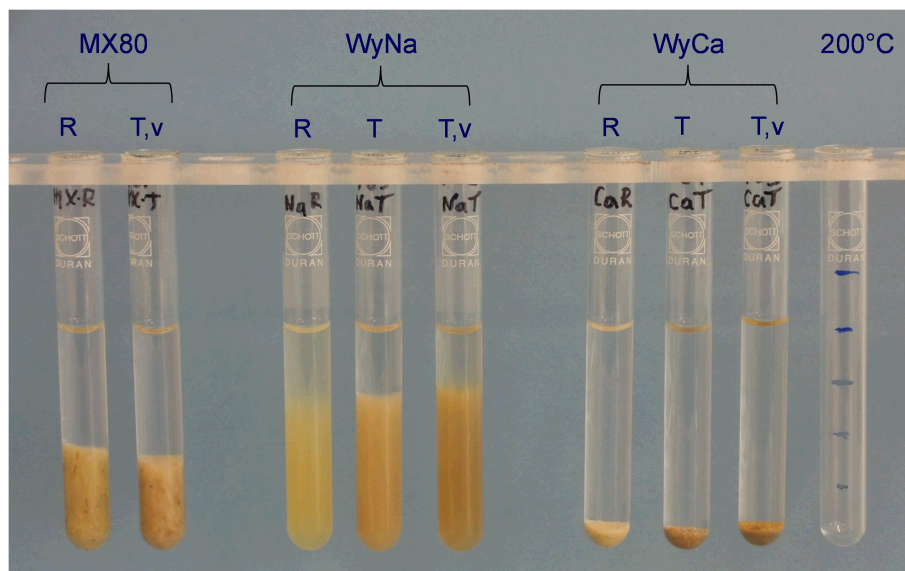
### Bastuprojektet

Projektet innefattade laboratorieförsök med bentonitpellets i temperatur- och/eller relativ fuktighetsgradienter. Syftet var att kvalitativt, och i viss mån även kvantitativt, studera vattenupptag och tätningsförmågan hos en pelletsfyllning. Försöken visade att ånga kondenserade under samtliga undersökta förhållanden, och att vattenupptag från kondenserat vatten totalt dominerade över vattenupptag direkt från ånga. I samtliga försök startade kondensationen i en punkt från vilken allt ytterligare upptag av vatten skedde genom kondensation längs kanterna av det fuktiga området. Samtliga tester visade att vattenupptaget minskade med tiden, vilket indikerar att pelletssystemet tätade och att ångtransporten minskade med tiden. Försöken är avslutade och en rapport finns för granskning (Birgersson and Goudarzi 2013 (publiceras i januari 2014)).

### Montmorillonitstabilitetsprojektet

De torra förhållandena i Forsmark gör att det är intressant att studera montmorillonitomvandling under omättade förhållanden. Couture (1985) rapporterade att bentonit som utsatts för upphettad vattenånga tappade en stor del av sin svällförmåga. Däremot identifierades inga mineralogiska förändringar. Därför genomförs temperaturförsök med montmorillonit som har varierande vatten-mättnadsgrad för att avgöra om vattenånga har någon speciell inverkan på svällningsegenskaperna. Om så är fallet kommer inverkan att kvantifieras för olika exponeringstider och temperaturer. Vidare innefattar arbetet försök att identifiera mekanismen bakom en sådan ångpåverkan.

En del av projektet innefattar försöksserier med material som kortvarigt (7 dygn) exponerats för temperaturer på upp till 200°C vid olika vattenmättnadsgrader. Försöksserierna innefattar tio olika bentoniter, vilka representerar olika brytningsplatser och därmed leverantörer, samt olika motjonssammansättningar. Även försök med fyra olika renade montmorilloniter som helt jonbyts till kalcium, natrium respektive kalium har genomförts. Vattenmättnadsgraden har styrts enligt två principer; dels passivt via tillförd mängd vatten i ett slutet system, dels via extern kontroll av vattenaktiviteten. Resultaten visar inga tydliga skillnader som följd av hydrotermalbehandlingen mellan omättade och vattenmättade prov med avseende på svällningskapaciteten (Figur 1). Däremot finns signifikanta skillnader i sedimentationsbeteende hos bentoniter/montmorilloniter som innehåller kalcium som motjon, sannolikt som följd av strukturella förändringar. Vidare finns stora förväntade skillnader mellan prov som domineras av natrium som motjon och prov som domineras av kalcium. Generellt sett är skillnader i uppmätta svällningsegenskaper som följd av hydrotermalbehandling försumbara i jämförelse med skillnaderna mellan natriumdominerade och kalciumdominerade material. Effekterna av kortvarig ångpåverkan på fri svällning bedöms därför inte vara något problem för ett KBS-3 förvar. Laboratorieförsöken är avslutade och rapportering pågår.



**Figur 1.** Resultat från försök med fri svällning. Samtliga provrör innehåller 1,00 gram material som svällt till maximal volym. MX-80 bentonit var utgångsmaterial för samtliga prov som för vissa försök renats och jonbytt till natrium- (WyNa) respektive kalciumform (WyCa). R indikerar referensmaterial, T indikerar material hydrotermalbehandlat vid full vattenmättnad, och T,v indikerar material hydrotermalbehandlat i omättat tillstånd.

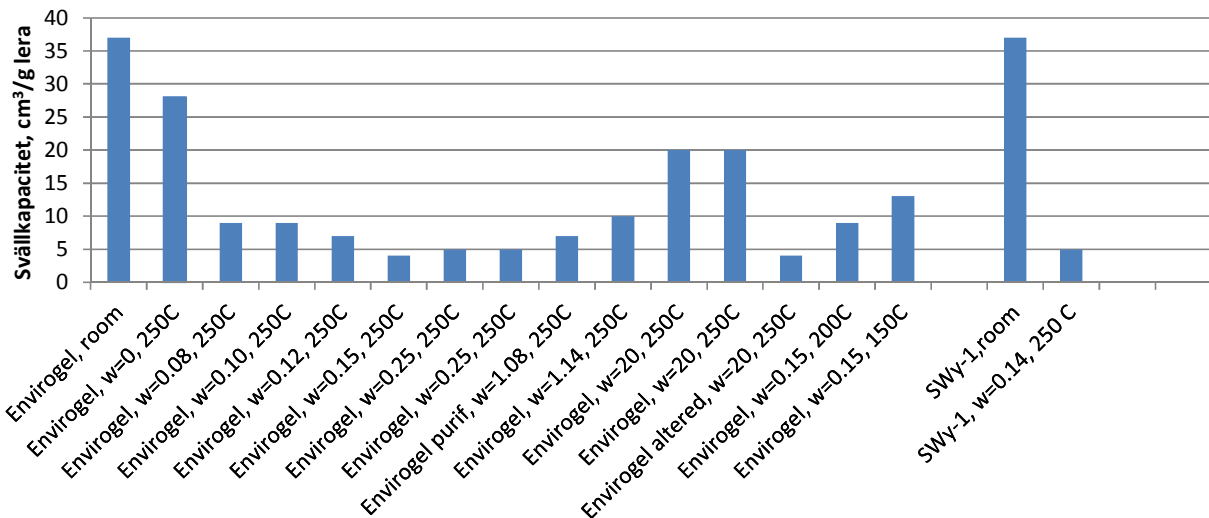
## Från SKB fristående publikationer med relevanta undersökningar

Vid sidan av SKBs studier av förhållanden som är relevanta för långsam vattenmättnad av bufferten i ett KBS-3 förvar finns följande publikationer med relevanta undersökningar.

### Artikel av Couture

Couture (1985) utsatte ett antal bentoniter för en kortvarig hydrotermalbehandling, och mätte därefter volymen vid maximal utsvällning. Resultaten visade att vattenkvoten (massa vatten/massa bentonit) vid hydrotermalbehandlingen hade stor betydelse för den efterföljande utsvällningen (Figur 2). Helt torra prov ( $w = 0$ ) och prov med mycket hög vattenkvot ( $w = 20$ ) påverkades mindre än prov med medelhög vattenkvot ( $w = 0,08$  till  $w = 1,14$ ). Exponering av prov med en vattenkvot på 0,15 vid 150°C under 7 dagar minskade den maximala volymen till under 50 % av utsvällningen hos referensmaterial. Vid 250°C minskade svällkapaciteten till drygt 10 %. Couture drog slutsatsen att de uppmätta förändringarna i bentonitens egenskaper har betydelse för tätningsförmågan, och att effekten måste beaktas i en säkerhetsanalys. Begränsade mineralogiska undersökningar genomfördes på hydrotermalt behandlat material, men inga kemisk/mineralogiska förändringar kunde identifieras i förhållande till obehandlat referensmaterial. I samtliga undersökta fall svällde bentoniten till avsevärt högre vattenkvoter än vad som är nödvändigt för funktionen i ett KBS-3 förvar. Den mest extrema reduktionen av svällförmågan (4

cm<sup>3</sup>/gram lera) motsvarar en vattenkvot på 3,64, vilket kan jämföras med den lägsta nominella vattenkvoten ( $w = 0,31$ ) i bufferten i ett KBS-3 förvar. Den uppmätta reduktionen av maximal utsvällning även vid så hög temperatur som 250°C bedöms därför sakna betydelse för bufferten i ett KBS-3 förvar.



**Figur 2.** Svällkapacitet hos hydrotermalbehandlat material från Couture (1985). Etiketterna anger lertyp, vattenkvot och temperatur vid hydrotermalbehandlingen.

#### Teknisk rapport av Haas et al. (1999)

Studien omfattade geotekniska och mineralogiska undersökningar av de två bentonitmaterialen Montigel (Ca<sup>2+</sup>-dominerat) och MX-80 (Na<sup>+</sup>-dominerat) som utsatts för olika former av ångbehandling. Cyklisk ångbehandling av montigel-bentoniten ledde till en reduktion av svälltrycket med som mest 50 % av uppmätt tryck för obehandlat material. Svälltrycket återställdes emellertid efter ultraljudsbehandling, torkning och malning, och i vissa fall uppmättes även högre tryck än för referensmaterialet. Krympförsök, flytgränsförsök, sedimentationsförsök samt vattenadsorptionsförsök med ångbehandlat material uppvisade inga eller obetydliga förändringar i förhållande till referensmaterial. De mineralogiska undersökningarna omfattade katjonbyteskapacitet, basplansavstånd (XRD) samt BET-yta. Samtliga undersökningar visade små eller obetydliga skillnader i förhållande till referensmaterial oberoende av temperatur och exponeringstid.

#### Artikel av Oscarson och Dixon (1990)

Studien innefattade försök med bentonit vid olika vattenmättnadsgrad (0, 50, 85 och 100 %) som utsattes för temperaturer på upp till 150°C. Efter hydrotermalbehandlingen vattenmättades proven och svälltryck och hydraulisk konduktivitet bestämdes både vid förhöjd temperatur och vid rumstemperatur. Inte i något fall uppmättes någon signifikant förändring i egenskaperna i jämförelse med referensmaterial.

Morfologiska och mineralogiska analyser med hjälp av svepelektronmikroskopi och röntgendiffraktion

genomfördes, och katjonbyteskapaciteten bestämdes. Inga förändringar i förhållande till referensmaterial kunde emellertid detekteras.

## **Sammanfattning av studier med relevans på långsam vattenmättnad av bufferten**

I det ovan beskrivna undersökningsmaterialet finns indikationer på strukturella förändringar, som följd av korttidsexponering av viss hydrotermal behandling, speciellt då kalcium är den dominerande motjonen, vilket tycks kunna påverka svällnings- alternativt sedimentationsegenskaperna hos bentoniten. Det finns emellertid ingenting i ovan beskrivna undersökningsmaterial som tyder på mineralogiska förändringar hos montmorilloniten som följd av kortvarig exponering för torra eller halvtorra förhållanden vid temperaturer på upp till 250°C.

Transportkapaciteten av lösta specier är generellt sett lägre vid lågt vatteninnehåll, vilket därmed kan förväntas reducera omfattningen av de flesta kända omvandlingsprocesserna under omättade förhållanden. Specifika processer, som inte studerats i ovan beskrivna försöksserier, som följd av gradienter i temperatur, vattenhalt och salthalt kan emellertid tänkas ge upphov till transport i delvis mättad bentonitbuffert, vilket därmed kan leda till utfällningar. Ojämn fördelning i bufferten av klorid från grundvattnet, och omfördelning av relativt lösliga sekundära mineral i bufferten, t ex gips, har observerats i fältförsök där en kraftig temperatur- och/eller vattenmättnadsgradient förekommit, t ex i LOT-försöken (Muurinen 2003, Karnland 2011). De omfördelade mineralens relativa löslighet innebär att reaktionerna i allmänhet är reversibla, och att eventuella utfällda mineral kommer att lösas upp och koncentrationerna utjämnas när vattenmättnaden ökar. Sådana utfällningar förväntas därför inte påverka buffertens långtidsfunktion.

## **Referenser**

**Birgersson M, Goudarzi R, 2013.** Studies of vapor transport from buffer to tunnel backfill (“sauna” effects). SKB R-13-42, Svensk Kärnbränslehantering AB.

**Couture R A, 1985.** Steam rapidly reduces the swelling capacity of bentonite. Nature 318, 50–52.

**Haas R, Teyssiere P, Bucher F, 1999.** Einfluss von Wasserdampf auf Quellpotential von Bentonit. Nagra Report NAB 99-31, Nagra, Switzerland.

**Karnland O, 2010.** Chemical and mineralogical characterization of the bentonite buffer for the acceptance control procedure in a KBS-3 repository. SKB TR-10-60, Svensk Kärnbränslehantering AB.

**Karnland O, 2011.** Long term test of buffer material at the Äspö HRL, LOT project. Final report on the A0 test parcel. SKB TR-09-31, Svensk Kärnbränslehantering AB.



**Karnland O, Birgersson M, 2006.** Montmorillonite stability. With special respect to KBS-3 conditions. SKB TR-06-11, Svensk Kärnbränslehantering AB.

**Muurinen A, 2003.** Chemical conditions in the A0 parcel of the long-term test of buffer material in Äspö (LOT). Posiva Working Report 2003-32, Posiva Oy, Finland.

**Oscarson D W, Dixon D A, 1990.** The effect of heating unsaturated bentonite on the swelling and hydraulic properties of subsequently saturated clay. Proceedings of the Annual Conference and 1st Biennial. Environmental Speciality Conference of the Canadian Society of Civil Engineering, Hamilton, Ontario, Volume 11-1, 312–323.