

ISPITIVANJE SVOJSTAVA BENTONITA KAO INŽENJERSKE BARIJERE U ODLAGALIŠTIMA RADIOAKTIVNOG OTPADA

CHARACTERIZATION OF BENTONITE FOR ENGINEERED BARRIER SYSTEMS IN RADIOACTIVE WASTE DISPOSAL SITES

DUBRAVKO DOMITROVIĆ, HELENA VUČENOVIĆ, BILJANA KOVAČEVIĆ ZELIĆ

¹⁾ Rudarsko-geološko-naftni fakultet Sveučilišta u Zagrebu, Pierottijeva 6, HR-10000 Zagreb, Hrvatska

Ključne riječi: bentonit, kontrola kvalitete, odlagališta radioaktivnog otpada

Key words title: bentonite, quality control, radioactive waste disposal sites

Sažetak

Inženjerske barijere prisutne su u odlagalištima radioaktivnog otpada kako bi se osigurala bolja izolacija te zaštita ljudi i biosfere od opasnog ionizirajućeg zračenja radioaktivnog otpada. Funkcija brtvljenja osigurava se uglavnom upotrebom cementa ili gline (bentonita). Kontrola kvalitete gline provodi se postupcima uobičajenim za ispitivanje materijala koji se ugrađuju u brtvene barijere bilo kojeg inženjerskog zahvata. Jedina je razlika u kriterijima koje glina mora zadovoljiti. Propisana svojstva glina ovise također i o vrsti matične stijene. U članku su opisana svjetska iskustva u zbrinjavanju različitih vrsta radioaktivnog otpada. Detaljnije su opisani standardni postupci kontrole kvalitete bentonitih glina koje se koriste kao brtvene barijere u odlagalištima radioaktivnog otpada, te neka vlastita iskustva i rezultati ispitivanja u provedbi postupaka za određivanje indeksnih pokazatelja (indeks slobodnog bubrenja, kapacitet upijanja vode, granice plastičnosti) te ispitivanja hidrauličke propusnosti bentonita.

Abstract

Engineered barrier systems are used in radioactive waste disposal sites in order to provide better protection of humans and the environment from the potential hazards associated with the radioactive waste disposal. The engineered barrier systems usually contain cement or clay (bentonite) because of their isolation properties and long term performance. Quality control tests of clays are the same for all engineering barrier systems. Differences may arise in the required criteria to be met due for different application. Prescribed clay properties depend also on the type of host rocks. This article presents radioactive waste management based on best international practice. Standard quality control procedures for bentonite used as a sealing barrier in radioactive waste disposal sites are described as some personal experiences and results of the index tests (free swelling index, water adsorption capacity, plasticity limits) and hydraulic permeability of bentonite.

1. Uvod

Odlaganje je posljednji korak gospodarenja radioaktivnim otpadom. Ovisno o vrsti radioaktivnog otpada odlagališta mogu biti na površini, na malim dubinama ispod površine ili u dubokim geološkim formacijama. Neovisno o mjestu odlaganja, cilj izrade odlagališta je izbjegavanje svake mogućnost ugrožavanja života i zdravlja ljudi, biljnog i životinjskog svijeta ili okoliša prilikom postupanja i nakon odlaganja radioaktivnog otpada. Izolacija otpada od elemenata okoliša osigurava se kombinacijom umjetnih inženjerskih barijera i matične stijene kao prirodne barijere. Kao glavni element inženjerskih barijera danas se često koristi bentonit zbog svoje velike bubrivosti te niske hidrauličke propusnosti. Kako bi se osigurala zadovoljavajuća izolacijska sposobnost, materijal koji se koristi za izradu inženjerske barijere mora posjedovati propisana svojstva, koja se ispituju provedbom postupaka kontro-

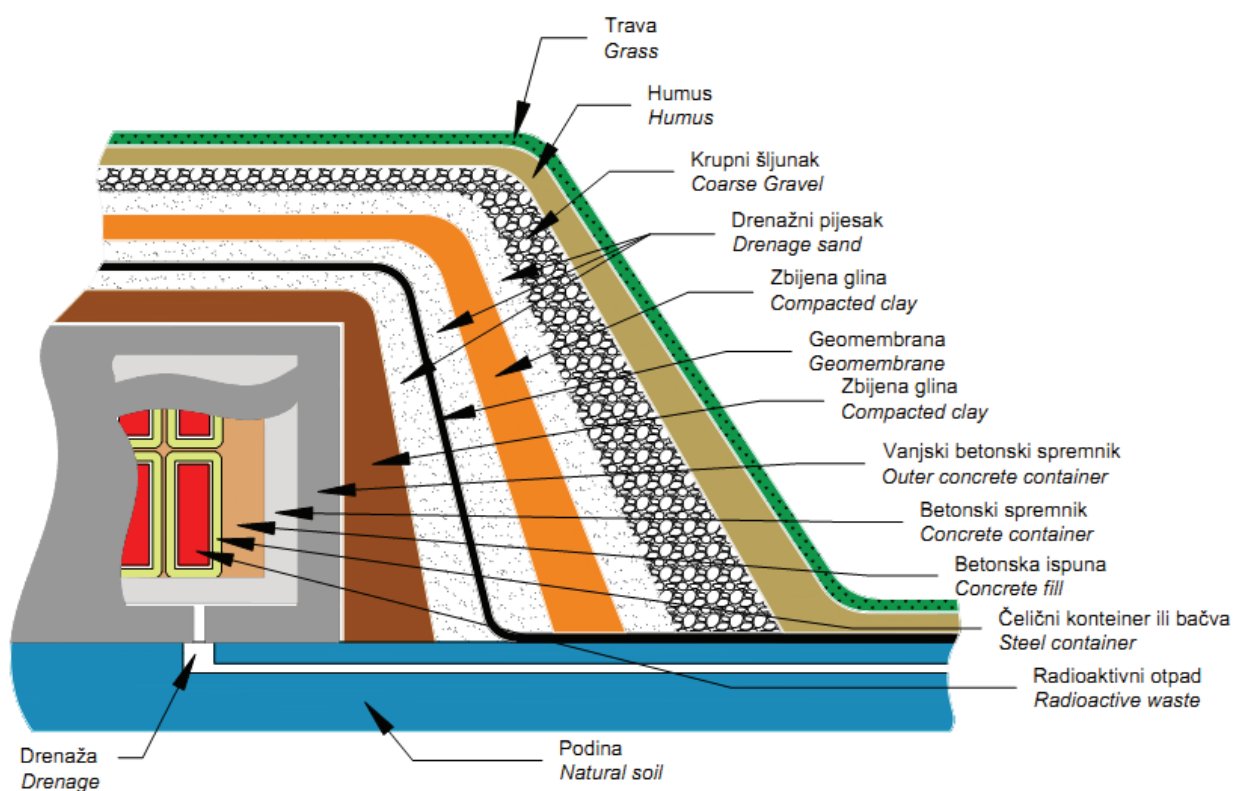
le kvalitete. U ovom radu su opisana svjetska iskustva i primjeri dobre prakse za odlaganje radioaktivnog otpada. Detaljnije se razmatraju pitanja izgradnje inženjerskih barijera, kontrole kvalitete bentonita te laboratorijska ispitivanja koja se provode u svrhu kontrole kvalitete. Također su opisana neka vlastita iskustva i rezultati ispitivanja provedenih korištenjem identičnih laboratorijskih ispitivanja na uzorcima materijala koji bi potencijalno mogli biti korišteni za izradu spomenutih brtvenih barijera.

2. Odlaganje radioaktivnog otpada

Osnovno načelo trajnog odlaganja radioaktivnog otpada je njegova sigurna izolacija od biosfere tijekom dugog vremenskog razdoblja. Način odlaganja ovisi o vrsti radioaktivnog otpada. U odlagališta površinskog tipa odlaze se niskoradioaktivni otpad. Trenutno ih je u svijetu aktivno sedam (WNA, 2010). Odlagališta pripovršinskog

tipa koriste se za odlaganje niskoradioaktivnog otpada te kratkoživućeg sredneradioaktivnog otpada. Ovaj tip odlagališta trenutno se aktivno koristi u Švedskoj i Finskoj (WNA, 2010). U susjednoj Sloveniji gradit će se odlagalište nisko i srednje radioaktivnog otpada na lokaciji Vrbina u općini Krško, u blizini postojeće Nuklearne elektrane Krško (NEK). Trenutno se izvode istražni radovi na odabranoj lokaciji. Dvogodišnji probni rad trebao bi započeti 2014. (ARAO, 2009). Navedeno odlagalište sastojalo bi se od dva silosa koji bi trebali biti izgrađeni sukcesivno. Projektom je planirano zatvaranje odlagališta 2039. godine nakon dekomisije NEK. U slučaju trajnog odlaganja dugoživućeg sredneradioaktivnog otpada i visokoradioaktivnog otpada, trenutno ne postoji niti jedno izgrađeno odlagalište u svijetu (WNA, 2010). Obzirom da je vrijeme poluraspada pojedinih radionuklida iz otpada često dulje i od milijun godina, smatra se da je najbolji način traj-

nog odlaganja ove vrste otpada u za to prikladne duboke geološke formacije. Koncept površinskih odlagališta niskoradioaktivnog otpada sastoji se od odlaganja metalnog spremnika ili bačvi s otpadom u za to predviđene betonske spremnike izrađene na površini ili djelomično ukopane u tlu (NEA, 1999). Nakon što se predviđeni volumen betonskog spremnika ispuni otpadom, preostali volumen zapunjava se najčešće betonom ili bentonitom. Betonski spremnici se zatim prekrivaju sustavom zaštitnih slojeva koji imaju funkciju drenaže i brtvljenja odnosno sprečavanja bilo kakvog kontakta biosfere i betonskih spremnika a time i odloženog otpada (slika 1). Pri tome se funkcija brtvljenja uglavnom postiže upotrebom geomembrane i sloja zbijene gline tj. kombinacijom geosintetičkog i zemljanog materijala. Kao djelomična alternativa sloju zbijene gline može se upotrijebiti mješavina bentonita i zemljanog materijala.



Slika 1. Koncept površinskog odlaganja nisko radioaktivnog otpada (modificirano iz Levant, 1997)

Figure 1. The concept for near surface disposal of low-level waste (modified from Levant, 1997)

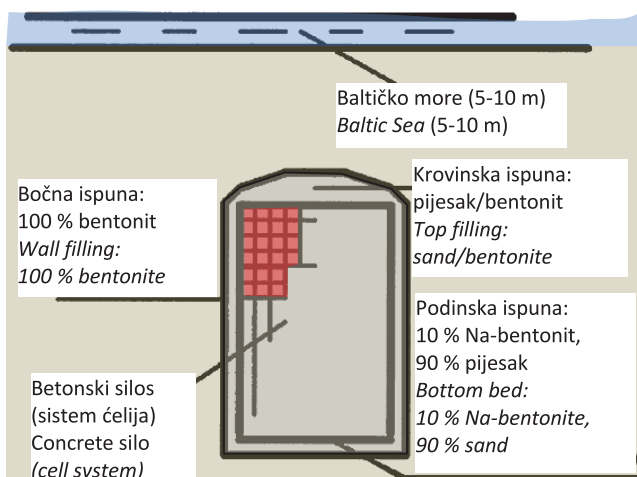
Koncept pripovršinskih odlagališta niskoradioaktivnog i kratkoživućeg srednje-radioaktivnog otpada sastoji se od izrade podzemnih prostorija na manjim dubinama, do približno 150 m (NEA, 1999). Kao primjer prikazano je švedsko odlagalište nisko i kratkoživućeg sredneradioaktivnog otpada SFR s naglaskom na upotrebu bentonita kao inženjerske barijere (slika 2). Prikazano je odlaganje radioaktivnog otpada u betonske silose obložene bentonitnom ispunom.

Koncept odlaganja dugoživućeg srednje-radioaktivnog otpada i visokoradioaktivnog otpada sastoji se od

podzemnih prostorija koje se izrađuju u stabilnim geološkim formacijama na velikim dubinama (250 do 1000 m) u koje se odlaže radioaktivni otpad. Razlog ovakvog pristupa nalazi se u dugom vremenu poluraspada radionuklida što iziskuje i izolaciju kroz dugi vremenski period. Ovo se osigurava kombinacijom umjetnih inženjerskih barijera (bentonit, cement i sl.) i prirodnih barijera u obliku pogodne matične stijene u kojoj se odlagalište izvodi (metamorfne i magmatske stijene, sol, glina). Kriteriji da bi duboke geološke formacije bile pogodne za odlaganje ove

vrste otpada su (IAEA, 2003): geološka stabilnost kroz dugi vremenski period (milijuni godina), male količine podzemnih voda, stabilni geokemijski i hidrogeokemijski uvjeti (redukcijski uvjeti) te dobra inženjerska svojstva matične stijene kako bi bila omogućena izgradnja odlagališta kao i aktivna uporaba odlagališta (tijekom njegova punjenja) kroz dulji vremenski period.

Iz svega navedenog uočava se da sva tri koncepta odlagališta otpada sadrže inženjerske odnosno umjetne barijere kako bi se osigurala bolja izolacija te zaštita ljudi i biosfere od opasnog ionizirajućeg zračenja radioaktivnog otpada. Kako takve barijere imaju i funkciju brtvljenja obično su im glavni sastojci cement ili glina (uglavnom bentonit). Kad je riječ o konceptu odlaganja radioaktivnog otpada u duboke geološke formacije ove inženjerske barijere se obično sastoje od dvije komponente: tampona i ispune.



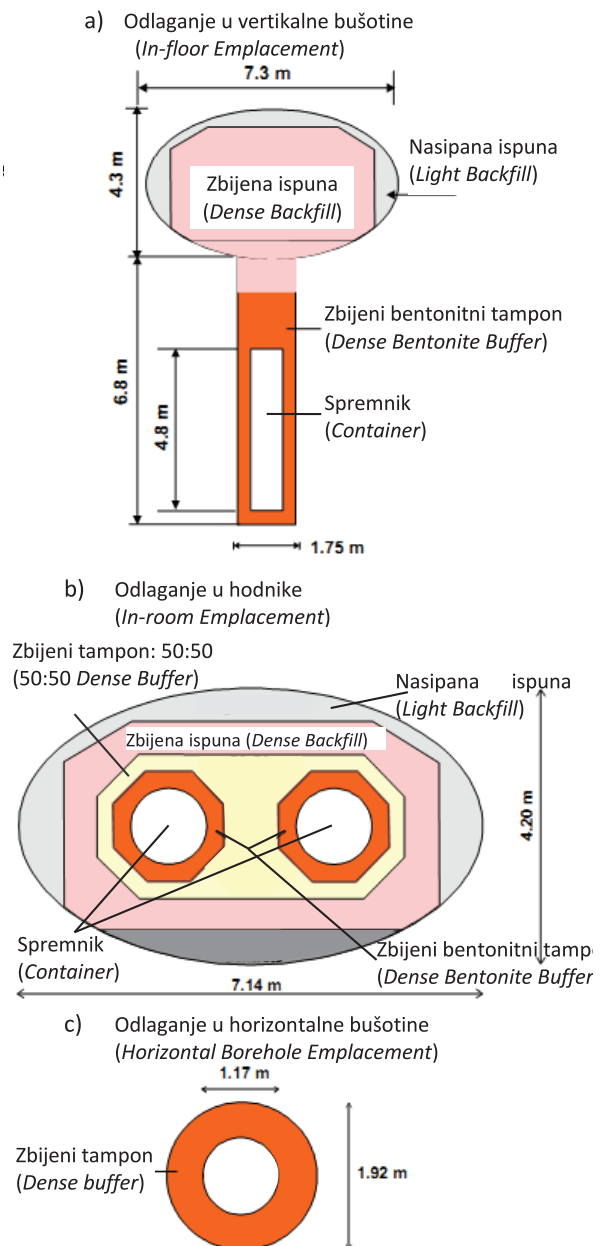
Slika 2. Koncept pri površinskom odlaganju nisko i kratkoživućeg sredneradioaktivnog otpada (modificirano iz Pusch, 1994)

Figure 2. The concept for near surface disposal of LLW and short lived ILW (modified from Pusch, 1994)

Njihov sastav i ugradnja ovise o projektnom rješenju odlaganja spremnika u odlagalištu (slika 3). Na navedenoj slici su vidljiva tri načina odlaganja spremnika u duboke geološke formacije: prvi način je odlaganje spremnika u vertikalne bušotine (slika 3a); drugi način je odlaganje spremnika u hodnike (slika 3b) a treći način je odlaganje spremnika u horizontalne bušotine (slika 3c).

3. Inženjerske barijere kod odlaganja u duboke geološke formacije

Tampon se koristi za zapunjavanje prostora između spremnika s otpadom i matične stijene i to u slučaju odlaganja spremnika u horizontalne i vertikalne bušotine a najčešće su to blokovi zbijenog bentonita. Kod odlaganja spremnika u hodnike, obzirom na veće dimenzije prostorija, tampon se sastoji od dva dijela. Uz sam spremnik dolaze blokovi zbijenog bentonita, a drugi dio tampona sastoji se od zbijenih blokova mješavine bentonita i pijeska (slika 3b).



Slika 3. Koncept odlaganja dugoživućeg sredneradioaktivnog i visokoradioaktivnog otpada (modificirano iz McMurry i dr., 2003)

Figure 3. The concept for disposal of long lived ILW and HLW in deep geological formations (modified from McMurry et al., 2003)

Zadaća tamponskih slojeva je dvojaka: s jedne strane to je zaštita spremnika u kojima se nalazi radioaktivni otpad a s druge strane ukoliko dođe do njegovog oštećenja, onda tamponski sloj sprječava prodor opasnih tvari u okoliš (Kiviranta and Kumpulainen, 2011; Pusch, 2002). Stoga materijal koji se koristi kao tampon mora biti dovoljno plastičan kako bi zaštitio spremnik od mogućih pomaka u matičnoj stijeni te dovoljno krut (zbijen) da osigura stabilan oslonac spremniku sprječavajući njegove pomake u podzemnom otvoru odnosno njegovo tonjenje. Također, mora imati mogućnost samozacjeljivanja. U tamponu ne smiju biti prisutni porni kanali koji bi omogućili advektivni tok otopljenih tvari i plinova kroz njega. Pore tampona

moraju biti što manjih dimenzija kako bi se onemogućila mikrobiološka aktivnost koja također može uzrokovati transport radionuklida. Sav transport kroz tamponski sloj smije biti jedino difuzijom. Toplinska vodljivost tamponskog sloja mora biti dovoljna da omogući dostatan transport topline od spremnika do matične stijene.

Na primjeru vjerojatnog budućeg odlagališta dugoživućeg sredneradioaktivnog i visoko radioaktivnog otpada Olkiluoto u Finskoj, prikazani su neki od kriterija koje bi trebao zadovoljiti tampon (Kiviranta and Kumpulainen, 2011):

- hidraulička propusnost $< 10^{-12}$ m/s,
- tlak bubrenja > 2 MPa,
- sadržaj montmorilonita > 75 %,
- gustoća saturiranog tla 1950 - 2050 kg/m³.

Ispune se dijele na zbijene i nasipane (slika 3). Zbijena ispuna je mješavina tucanika (dobivenog prilikom iskopavanja), neubrivenih gline i bentonita. Radi se o prethodno zbijenim blokovima kojima se zapunjavaju preostali prostori odlagališta. Nakon zatvaranja odlagališta, pristupni hodnici i okna također se zatvaraju i zapunjavaju ispunom. Nasipana ispuna sadrži manje tucanika a veći je udio bentonita. Koristi se za zapunjavanje preostalih bočnih i krovinskih otvora nakon postavljanja zbijenih blokova tampona i zbijene ispune. Nasipana ispuna se uglavnom nasipava pneumatski te ona stoga nema zbijenost odnosno gustoću kao zbijeni blokovi tampona i zbijene ispune. Također treba navesti da bentonit u tamponskim i slojevima zasipa ne smije sadržavati tvari koje bi mogle biti potencijalno štetne za druge vrste barijera u odlagalištu kao ni za matičnu stijenu (Kiviranta and Kumpulainen, 2011; Pusch, 2002). Drugim riječima količina potencijalno štetnih tvari kao što su organske tvari, sumpor u različitim pojavnim oblicima, oksidirajuće tvari i slično mora biti niska.

Kako bi tamponski sloj funkcionirao u skladu s projektiranim parametrima, podzemni prostor odlagališta se zapunjava. (Kiviranta and Kumpulainen, 2011; Pusch, 2002). Nakon postavljanja, ispuna osigurava protutlak bubrenju bentonita u tamponskom sloju pa nastala naprezanja ograničavaju bubrenje tamponskog sloja čime se zadržava potrebna gustoća tampona. Također, druga je uloga ispune ograničavanje transporta radionuklida u slučaju oštećenja spremnika kao i onemogućavanje prodora podzemne vode u tijelo odlagališta. I u ovom slučaju ne smije doći do advektivnog transporta već bi transport kroz ispunu trebao biti isključivo difuzijom. Nadalje, zasipni slojevi poboljšavaju mehaničku stabilnost podzemnih prostorija kao i okolne matične stijene. Kako bi ovi uvjeti bili ispunjeni potrebno je osigurati intimni kontakt ispune i matične stijene što se postiže postavljenjem zbijenih blokova. Jedan od kriterija koje bi trebala zadovoljiti ispuna (Kiviranta and Kumpulainen, 2011) koja će se ugrađivati u Olkiluoto u Finskoj je da njezina hidraulička propusnost mora biti manja od 10^{-10} m/s.

4. Kontrola kvalitete bentonita

Dominantni sastojak bentonita su minerali glina smektitne grupe ali bentonit može sadržavati i male količine drugih minerala glina, najčešće ilita. Najzastupljeniji mineral glina iz smektitne grupe koji se javlja u bentonitima je montmorilonit.

Smektitni imaju sićušne čestice slojevite (lističaste) strukture. Karakterizira ih mali jedinični naboj što je nedostavno za čvrsto vezanje međuslojnih kationa a time i slojeva međusobno. Zbog takve strukture kapacitet ionske zamjene se kreće od 65 do 140 meq/100 g dok specifična površina čestica doseže i do 800 m²/g. Ovakvi smektitni mogu imati veliku bubrivost te nisku hidrauličku propusnost ($k < 10^{-12}$ m/s). Navedena svojstva smektita utječu na ponašanje bentonita pa njihov veći postotak znači i veću kvalitetu bentonita.

Glavni uzročnik bubrenja su slabe međuslojne veze. Vrsta izmjenjivih kationa koji se nalaze između slojeva utječe na intenzitet bubrenja. Povećanje volumena montmorilonita uslijed hidratacije odvija se u dvije faze: intrakristalno bubrenje i osmotsko bubrenje. Intrakristalno bubrenje nastupa kada se montmorilonit hidratizira iz potpuno suhog stanja. Kada se kod montmorilonita na mjestima zamjenjivih kationa nalaze jednovalentni kationi (npr. Na⁺, K⁺, Li⁺), intrakristalno bubrenje u vodi ili u otopini s niskom koncentracijom elektrolita može prijeći u osmotsko bubrenje. Tijekom tog procesa ioni Na⁺ prelaze iz međuslojnog prostora na vanjsku površinu sloja. Pri tome nastaju tzv. difuzni dvostruki slojevi koji se međusobno odbijaju što vodi djelomičnoj dekompoziciji kristala i djelomičnoj separaciji u individualne silikatne slojeve. To rezultira bitno većim povećanjem volumena nego u slučaju intrakristalnog bubrenja, tako da kalcijski montmoriloniti imaju sposobnost povećanja volumena od dva do četiri puta u odnosu na dehidratizirani uzorak dok kod natrijskih montmorilonita to iznosi od osam do petnaest puta. Odnos između hidrauličke propusnosti bentonita i bubrenja čestica montmorilonita općenito se pripisuje molekulama vode koje su vezane za strukturu čestica. Ove molekule se smatraju nepokretnima te djeluju kao čvrsta faza u uvjetima toka. Prema tome povećanjem broja molekula vode odnosno bubrenjem smanjuje se broj kanala dostupnih za tok pa oni postaju nepravilniji u smislu veće zavojitosti i krivudavosti te dolazi do smanjenja hidrauličke propusnosti.

Kako bi se postigla što bolja svojstva bubrenja kalcijskih bentonita često se provodi aktivacija ionima natrija (natrijev karbonat) i na taj način se izvorni kalcijski ioni izmjenjuju natrijevim ionima. Ovakvi bentoniti poznati su kao aktivirani bentoniti. Međutim, zbog slabe veze međuslojnih kationa te većeg afiniteta prema kationima većeg naboja kod kontakta natrijskih bentonita s otopinama soli viševalentnih kationa lako dolazi do zamjene kationa natrija na zamjenjivim pozicijama s kationima većeg naboja (najčešće kalcij) pa time i do značajnog smanjenja bubrenja odnosno brtvenih svojstava bentonita.

Odabir pogodnih komponenti za pripremu tamponskih slojeva i slojeva zasipa zahtjeva prethodno provođenje opsežnih laboratorijska ispitivanja prema odgovarajućim standardnim procedurama. Sve količine materijala koje će se ugrađivati u odlagalištu moraju zadovoljiti potrebne kriterije za ugradnju u tamponske slojeve i slojeve ispune stoga se prije odabira materijala za ugradnju i same ugradnje materijal podvrgava kontroli kvalitete.

Tražene vrijednosti ovise o potrebnim projektiranim vrijednostima minimalne izolacijske sposobnosti različitih materijala koji se upotrebljavaju kao tamponski ili materijali ispune. Pod pojmom izolacijske sposobnosti materijala podrazumijevaju se propisane vrijednosti hidrauličke i plinske propusnosti, kapaciteta difuzije te njegova reološka ponašanja. Sve te veličine su u funkcijskoj zavisnosti s granulometrijskim sastavom, mineraloškim sastavom kao i ukupnom gustoćom odnosno zbijenošću materijala. Obzirom da se brtveni slojevi nalaze u nesaturiranim uvjetima danas su istraživanja navedenih hidromehaničkih svojstava i ponašanja usmjerena prema ispitivanjima uz poznate uvjete usisnih naprezanja. Svojstva

materijala koja se kontroliraju prije ugradnje su približno ista kao i za ostale vrste inženjerskih barijera. Razlika može postojati u kriterijima koje je potrebno zadovoljiti odnosno traženim vrijednostima pojedinih parametara. Obzirom na dugo vremensko razdoblje kroz koje je potrebno osigurati djelovanje brtvenih sustava posebnu pažnju je potrebno posvetiti trajnosti bentonita. Također, sadržaj nekih dodatnih minerala u bentonitu ili u materijalima koji se kombiniraju s bentonitom mora biti ograničen. Tu se prije svega misli na sulfide, sulfate i minerale bogate kalijem.

Tražena svojstva materijala koji se ugrađuju u tamponske slojeve i slojeve ispune također ovisi i o vrsti matične stijene. Tako Koch, 2008, navodi da se u solima kao matičnoj stijeni preporuča upotreba kalcijevih bentonita. U ostalim vrstama matičnih stijena, gdje nema mogućnosti kontakta bentonita s otopinama soli preporuča se korištenje natrijskih bentonita. Kako bi se osigurala dugotrajna stabilnost inženjerskih barijera i nakon zatvaranja odlagališta preporuča se da bentonit ugrađen u tampon mora zadovoljiti kriterije prikazane u tablici 1.

Tablica 1. Tražena svojstva bentonita za primjenu u tamponu. Vrijednosti za Na/Ca-bentonit (Ahonen i dr., 2008; Koch, 2008; SKB, 2009; Laaksonen, 2010).

Table 1. Preliminary required values for buffer bentonite. Separate requirements for Na/Ca-bentonite (Ahonen et al. 2008; Koch, 2008; SKB, 2009; Laaksonen, 2010).

Ispitivanje (Test)	Tražena srednja vrijednost - Na-bentonit (Required average value - Na-bentonite)	Granične vrijednosti po ispitivanju - Na-bentonit (Single test, min./max. value - Na-bentonite)	Tražena srednja vrijednost - Ca-bentonit (Required average value - Ca-bentonite)	Granične vrijednosti po ispitivanju - Ca-bentonit (Single test, min./max. value - Ca-bentonite)
Vlažnost - deklarirana (Water content, as received)	≤ 13 %	max. 15 %	≤ 13 %	max. 15 %
Indeks slob. bubrenja (Swelling index)	≥ 20 ml/2g	min. 15 ml/2g	≥ 15 ml/2g	min. 10 ml/2g
Kapacitet upijanja -Enslin Neff (Water adsorption index Enslin Neff)	≥ 200 %	min. 150 %	≥ 200 %	min. 150 %
Granica tečenja (Liquid limit)	≥ 250 %	min. 200 %	≥ 80 %	min. 60 %
Hidraulička propusnost** (Hydraulic conductivity)	≤ 10 ⁻¹² m/s	max. 10 ⁻¹¹ m/s	≤ 10 ⁻¹² m/s	max. 10 ⁻¹¹ m/s
Udio smektita (Smectite content)	≥ 75 %	min. 65 %	≥ 75 %	min. 65 %
Kapacitet ionske izmjene (Cation exchange capacity, CEC)	≥ 75 meq/100 g	min. 60 meq/100 g	≥ 60 meq/100 g	min. 50 meq/100 g
Tlak bubrenja** (Swelling pressure)	≥ 2 MPa		≥ 2 MPa	
Toplinska vodljivost* (Thermal conductivity)	≥ 1,0 W/Km	min. 1,0 W/Km	≥ 1,0 W/Km	min. 0,9 W/Km
Organski ugljik (Organic carbon)	< 1 %		< 1 %	

- nastavak tablice -

Ispitivanje (Test)	Tražena srednja vrijednost - Na-bentonit (Required average value - Na-bentonite)	Granične vrijednosti po ispitivanju - Na-bentonit (Single test, min./max. value - Na-bentonite)	Tražena srednja vrijednost - Ca-bentonit (Required average value - Ca-bentonite)	Granične vrijednosti po ispitivanju - Ca-bentonit (Single test, min./max. value - Ca-bentonite)
Sumpor u sulfidima (Sulphur in sulphides)	≤ 0,5 %		≤ 0,5 %	
Ukupni sumpor (Total sulphur)	≤ 1 %		≤ 1 %	

*Kod gustoće suhog tla od 1655 kg/m³, vlažnosti od 17 % i stupnja saturacije od 70 % (odgovara gustoći saturiranog tla od 1950 kg/m³) ili kod gustoće suhog tla od 1754 kg/m³, vlažnosti od 17 % i stupnja saturacije od 81 % (odgovara gustoći saturiranog tla od 2050 kg/m³). Nakon saturacije toplinska vodljivost ispitivanog bloka je 1,3 W/Km.

*In dry density of 1655 kg/m³, water content 17 % and degree of saturation 70 % (correspond to density of saturated soil 1950 kg/m³) or in dry density of 1754 kg/m³, water content 17 % and degree of saturation 81 % (correspond to density of saturated soil 2050 kg/m³). After saturation thermal conductivity of buffer block should be 1,3 W/Km.

**Gustoća suhog tla ispitivanih nesaturiranih blokova tampona 1655 – 1754 kg/m³.

**Dry density of unsaturated buffer blocks 1655 – 1754 kg/m³.

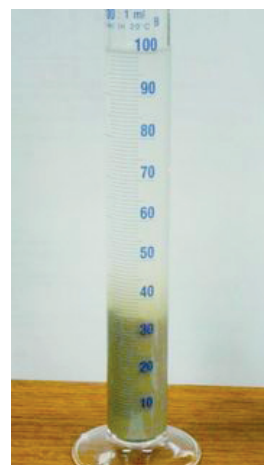
5. Ispitivanja bentonita u svrhu kontrole kvalitete

Metode ispitivanja koje se koriste za kontrolu kvalitete bentonitnih glina mogu se podijeliti u dvije grupe. Prva grupa ispitivanja obuhvaća brze i jednostavne postupke za karakterizaciju bentonita (vlažnost, indeks bubrenja, granice plastičnosti, kapacitet upijanja vode). U drugu grupu spadaju zahtjevnija ispitivanja (analiza kemijskog sastava, analiza mineraloškog sastava, tlak bubrenja, hidraulička propusnost) koja omogućavaju kvalitetniji uvid u svojstva kao što su sadržaj smektita, kapacitet ionske izmjene, hidraulička propusnost, bubrivost.

U Geomehničkom laboratoriju na RGNF-u moguće je provesti sva ispitivanja iz prve grupe, koja pripadaju ispitivanjima uobičajenim za kontrolu kvalitete mineralne komponente. Također, uz manje preinake na postojećoj opremi moguće je provesti složenija ispitivanja kao što je određivanje hidrauličke propusnosti i tlaka bubrenja. U nastavku su prikazani rezultati ispitivanja provedeni na uzorcima bentonitnih glina koje se koriste pri proizvodnji bentonitnih tepiha (Kovačević Zelić i dr., 2006).

5.1. Indeks slobodnog bubrenja

Za određivanje indeksa slobodnog bubrenja koristi se metoda definirana normom ASTM D 5890. Uzorak se pripremi sušenjem na 60 °C, nakon čega se prosije na situ od 75 μm. Od tako pripremljenog uzorka odvažu se 2 g koja se zatim postepeno usipavaju u menzuru (slika 4) napunjenu demineraliziranom vodom.



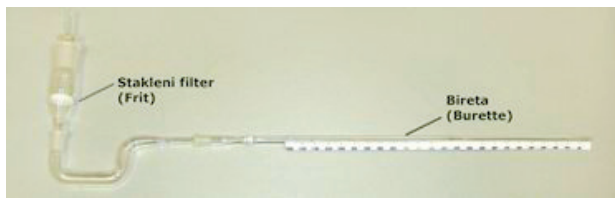
Slika 4. Menzura s uzorkom

Figure 4. Measuring cylinder with sample

Brzina usipavanja je približno 0,1 g/10 min. Nakon zadnjeg usipavanja uzorka te proteka vremena od 16 sati očita se volumen uzorka, koji predstavlja vrijednost slobodnog bubrenja izraženu u ml/2 g.

5.2. Kapacitet upijanja vode

Laboratorijsko ispitivanje kapaciteta upijanja vode izvodi se prema normi DIN 18132. Uzorak se pripremi sušenjem na 60 °C. Od tako pripremljenog uzorka odvažu se 0,2 g uzorka koji se zatim usipaju na stakleni filter uređaja za određivanje kapaciteta upijanja vode (slika 5). Volumen upijene vode očitava se na bireti tijekom iduća 24 sata. Promatra se volumen upijene vode u odnosu na početni suhi volumen uzorka.



Slika 5. Uređaj za određivanje kapaciteta upijanja vode

Figure 5. Water adsorption device

5.3. Hidraulička propusnost

Mjerenje koeficijenta propusnosti u troosnom uređaju metodom stalne razlike tlakova spada u konvencionalne metode mjerenja propusnosti slabopropusnih saturiranih tala. Određivanje protoka svodi se na mjerenje protoka vode, tj. promjene volumena uz određene uvjete tlaka. Zbog svojih prednosti, ovo je najčešće korištena metoda za mjerenje propusnosti. Uzorak je okružen fleksibilnom membranom (slika 6) koja prijanja uz njegove stijenke uslijed djelovanja ćelijskog tlaka, čime je spriječeno stvaranje kanala za prolazak vode na rubovima uzorka. Primjenom povratnog tlaka (*eng. back pressure*) lako se osigurava zasicenost uzorka čak i kod vrlo slabopropusnih tala.

5.4. Atterbergove granice

Od Atterbergovih granica, za kontrolu kvalitete najčešće se koriste granica tečenja i granica plastičnosti. Obje granice se mogu odrediti prema normi BS 1377-2. Nakon što se uzorak homogenizira i pripremi u plastičnom stanju, na dijelu uzorka se pomoću konusnog penetrometra (slika 7) određuje granice tečenja. U našem slučaju korišten je stožac 80 g/30°. Istraživanja su pokazala da kod glina s velikim udjelom smektita granica tečenja dobivena ovom metodom može biti i do 20 % (Pusch, 2002) manja u odnosu na granicu tečenja dobivenu pomoću Casagrandeovog uređaja pa na to treba obratiti pažnju prilikom interpretacije rezultata. Na drugom dijelu uzorka određuje se granica plastičnosti valjanjem valjčića. Granica plastičnosti predstavlja vlažnost kod koje valjčići promjera 3 mm pucaju daljnjim valjanjem (slika 7).



Slika 6. Troosna ćelija

Figure 6. Triaxial cell



Slika 7. Konusni penetrometar (desno), valjanje valjčića (gore lijevo)

Figure 7. Cone penetrometer (right), plastic limit determination (upper left)

Ako usporedimo dobivene vrijednosti s traženim iz tablice 1 može se vidjeti da vrijednosti zadovoljavaju tražene što se tiče indeksa slobodnog bubrenja i kapaciteta upijanja vode i to za oba uzorka. Dobivena vrijednost koeficijenta hidrauličke propusnosti na gornjoj je granici. Međutim, ovdje treba napomenuti da su vrijednosti koeficijenta hidrauličke propusnosti dobivene kod manjih efektivnih napreznja (50 kPa) pa prema tome i znatno manjih gustoća bentonita u odnosu na efektivna napreznja i gustoće koje se očekuju u inženjerskim barijerama odlagališta u dubokim geološkim formacijama obzirom

da se u tom slučaju bentonit ugrađuje kao zbijeni blokovi. Prema tome za očekivati je da bi i vrijednosti koeficijenta hidrauličke propusnosti bile manje.

U tablici 2 su prikazani rezultati dosadašnjih istraživanja na dvije vrste bentonita: prirodni natrijski bentonit poznat kao Wyoming bentonit i aktivirani natrijski bentonit lokalnog porijekla. Iako ova istraživanja nisu provedena s ciljem kontrole kvalitete materijala za ugrađivanje u inženjerske barijere odlagališta radioaktivnog otpada, postupci i norme su identični pa se i rezultati mogu upotrijebiti u ovu svrhu.

Tablica 2. Laboratorijske vrijednosti indeksnih pokazatelja i koeficijenta propusnosti (Strgar i dr., 2011)

Table 2. Index tests and hydraulic conductivity results. (Strgar et al., 2011)

Svojstvo bentonitne gline (<i>Bentonite properties</i>)	Metoda (<i>Testing method</i>)	Prirodni Na-bentonit (<i>Natural Na-bentonite</i>)	Aktivirani Na-bentonit (<i>Activated Na-bentonite</i>)
Indeks slobodnog bubrenja (ml/2 g) (<i>Free swell index</i>)	ASTM D 5890	31	30
Kapacitet upijanja vode (%) (<i>Water adsorption capacity</i>)	DIN 18132	517	450
Koeficijent propusnosti (m/s)* (<i>Hydraulic conductivity</i>)	ASTM D 5084	1,6·10 ⁻¹¹ *	6,1·10 ⁻¹¹ **

* Na saturiranim uzorcima, kod efektivnog napreznja od 50 kPa i hidrauličkog gradijenta od 40,4

* Saturated samples, effective stress 50 kPa and hydraulic gradient 40,4

** Na saturiranim uzorcima, kod efektivnog napreznja od 50 kPa i hidrauličkog gradijenta od 75

** Saturated samples, effective stress 50 kPa and hydraulic gradient 75

6. Zaključak

Općenito možemo reći da danas postoje tri koncepta odlaganja radioaktivnog otpada ovisno o njegovoj vrsti: površinska, pripovršinska i duboka geološka odlagališta. U sva tri slučaja, odlagališta sadrže inženjerske barijere kako bi se osigurala bolja izolacija te zaštita ljudi i biosfere od opasnog ionizirajućeg zračenja radioaktivnog otpada.

Bentonit se često primjenjuje u inženjerskim barijerama odlagališta radioaktivnog otpada zbog brtvenih svojstva odnosno iznimno male propusnosti. Kontrola kvalitete bentonita provodi se standardnim postupcima uobičajenim za ispitivanje materijala koji se ugrađuju u brtvene barijere bilo kojeg inženjerskog zahvata. Razlika je jedino u kriterijima koje bentonit mora zadovoljiti što je posljedica lokalnih uvjeta ugradnje te potrebnog izolacijskog potencijala. Osim toga, brtveni slojevi najčešće se nalaze u uvjetima nepotpune saturacije, pa se hidromehanička svojstva i ponašanje brtvenih slojeva pa tako i bentonitnih barijera danas proučavaju uz primjenu mehanike nesaturiranih tala.

Ovaj članak načinjen je uz financijsku potporu projekta «Ispitivanje trajnosti mineralnih brtvenih barijera» (195-0831529-1847) Ministarstva znanosti, obrazovanja i sporta Republike Hrvatske.

7. Literatura

- Ahonen L., Korkeakoski P., Tiljander M., Kivikoski H., Laaksonen R. (2008): Quality assurance of the bentonite material. Posiva WR 2008-33. Olkiluoto, Posiva.
- ARAO, 2009: Odlagalište nisko in srednje radioaktivnih odpadkov Vrbinja v občini Krško, Povzetek idejnega projekta, Agencija za radioaktivne odpadke, Slovenija, Ljubljana.
- IAEA (2003): Scientific and Technical Basis for the Geological Disposal of Radioactive Wastes, Technical Reports Series No. 413, Vienna, International Atomic Energy Agency.
- Kiviranta, L. and Kumpulainen, S. (2011): Quality Control and Characterization of Bentonite Materials, Working Report 2011-84, Olkiluoto, Posiva.
- Koch, D. (2008): European Bentonites as alternatives to MX-80, Science & Technology Series n° 334, Paris, Andra, 23-30.
- Kovačević Zelić, B., Kovačić, D., Matešić, L., Veličković, B. (2006), Quality Acceptance Testing of GCLs for Landfill Application. 5th International Congress on Environmental Geotechnics: Opportunities, Challenges and Responsibilities for Environmental Geotechnics. June 26-30, 2006, Cardiff, Wales, UK, Proceedings pp 525-532
- Laaksonen R. (2010): MANU - Purchase of bentonite -Process Description, Posiva WR 2009-64, Olkiluoto, Posiva.
- Levant, I (1997): Radioaktivni otpad, Zagreb, APO.
- McMurry, J., Dixon, D.A., Garroni, J.D., Ikeda, B.M., Stroes-Gascoyne, S., Baumgartner, P. and Melnyk, T.W., (2003): Evolution of a Canadian deep geologic repository: base scenario, Report Number:

- 06819-REP-01200-10092-R00, Toronto, Atomic Energy of Canada Limited.
- NEA (1999): *Low-Level Radioactive Waste Repositories: An Analysis of Costs*, Paris, Nuclear Energy Agency.
- Pusch, R. (1994): *Waste Disposal in Rock, Developments in Geotechnical Engineering*, 76. Elsevier Publ. Co.
- Pusch, R. (2002): *The Buffer and Backfill Handbook: Part 1: Definitions, basic relationships and laboratory methods*, Stockholm, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co.
- SKB (2009): *Design premises for a KBS-3V repository based on results from the safety assessment SR-Can and some subsequent analyses*, Stockholm, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co.
- Strgar, H., Domitrović, D., Kovačević Zelić, B., (2011): The impact of laboratory air temperature and relative humidity on bentonite water absorption capacity, *Rudarsko-geološko-naftni zbornik*, 23, 67-76.
- WNA (2010): World Nuclear Association, <http://www.world-nuclear.org/info/inf04ap2.html>.
- ASTM D 5084: Standard Test Methods for Measurement of Hydraulic Conductivity of Saturated Porous Materials Using a Flexible Wall Permeameter.
- ASTM D 5890: Standard Test Method for Swell Index of Clay Mineral Component of Geosynthetic Clay Liners.
- BS 1377-2: Methods of test for soils for civil engineering purposes. Part 2: Classification tests.
- DIN 18132 – 95: Bestimmung des Wasseraufnahmevermögens.

CHARACTERIZATION OF BENTONITE FOR ENGINEERED BARRIER SYSTEMS IN RADIOACTIVE WASTE DISPOSAL SITES

Depending on the radioactive waste type, disposal sites may be in the near-surface disposal facilities (at ground level or in caverns below ground level) or in deep geological formations. Near-surface disposal at ground level are implemented for low level radioactive waste in many countries (Czech Republic, France, Japan etc.). Near-surface disposal in caverns below ground level are implemented for low and short lived intermediate level radioactive waste in Finland and Sweden and will be implemented in the near future in Slovenia. Concept of disposal in deep geological formation is well investigated today and it is official policy in various countries for disposal of the long lived intermediate and the high level radioactive waste. Engineered barrier systems are used in radioactive waste disposal sites in order to provide better protection of humans and the environment from the potential hazards associated with the radioactive waste disposal. The en-

gineered barrier systems usually contain cement or clay (bentonite) because of their isolation properties and long term performance. Bentonite or other swelling clay materials are used as a sealing barrier in radioactive waste disposal sites due to its expansion characteristics, extremely low hydraulic conductivity, high attenuation capacity and plastic behavior. Bentonite can be defined as a clay or claystone composing mainly of smectite minerals, a group of swelling clay minerals. Due to its special properties, bentonite is a versatile material for use in geotechnical engineering. Quality control tests of clays are the same for all engineering barrier systems. Differences may arise in the required criteria to be met due for different application. Prescribed clay properties depend also on the type of host rocks. This article presents radioactive waste management based on best international practice. Standard quality control procedures for bentonite used as a sealing barrier in radioactive waste disposal sites are described as some personal experiences and results of the index tests (free swelling index, water adsorption capacity, plasticity limits) and hydraulic permeability of bentonite.