Nagra
Nationale
Genossenschaft
für die Lagerung
radioaktiver Abfälle

Cédra
Société coopérative
nationale
pour l'entreposage
de déchets radioactifs

Cisra
Società cooperativa
nazionale
per l'immagazzinamento
di scorie radioattive

TECHNISCHER BERICHT 88-04

Bohrlochversiegelung: Materialeigenschaften von hochverdichtetem Bentonit mit Eignungsbeurteilung

R.P. Brenner

Januar 1988

Elektrowatt Ingenieurunternehmung AG, Zürich

Parkstrasse 23 5401 Baden/Schweiz Telephon 056/20 55 11

Nagra
Nationale
Genossenschaft
für die Lagerung
radioaktiver Abfälle

Cédra
Société coopérative
nationale
pour l'entreposage
de déchets radioactifs

Cisra
Società cooperativa
nazionale
per l'immagazzinamento
di scorie radioattive

TECHNISCHER BERICHT 88-04

Bohrlochversiegelung: Materialeigenschaften von hochverdichtetem Bentonit mit Eignungsbeurteilung

R.P. Brenner

Januar 1988

Elektrowatt Ingenieurunternehmung AG, Zürich

Parkstrasse 23 5401 Baden/Schweiz Telephon 056/20 55 11

Der vorliegende Bericht wurde im Auftrag der Nagra erstellt. Die Autoren haben ihre eigenen Ansichten und Schlussfolgerungen dargestellt. Diese müssen nicht unbedingt mit denjenigen der Nagra übereinstimmen.

Le présent rapport a été préparé sur demande de la Cédra. Les opinions et conclusions présentées sont celles des auteurs et ne correspondent pas nécessairement à celles de la Cédra.

This report was prepared as an account of work sponsored by Nagra. The viewpoints presented and conclusions reached are those of the author(s) and do not necessarily represent those of Nagra.

ZUSAMMENFASSUNG

In diesem Bericht werden zuerst die bisher durchgeführten Untersuchungen an hochverdichtetem Na-Bentonit (MX-80) und Ca-Bentonit (Montigel) mit den daraus zur Verfügung stehenden Daten zusammengestellt. Als Unterlagen dienten fast ausschliesslich Berichte über Arbeiten, welche in Schweden und in der Schweiz ausgeführt wurden. Anschliessend wird die Eignung von Ca-Bentonit im Hinblick auf eine Verwendung als Versiegelungsmaterial in Bohrlöchern für Endlager des Typus B, d. h. für schwach und mittelaktive Abfälle, beurteilt.

Die Gegenüberstellung der für die Versiegelung relevanten Daten von MX-80 und Montigel zeigte, dass sich diese beiden Materialien in den meisten Eigenschaften nur wenig unterscheiden. Dies gilt vor allem auch für die entwickelbaren Quelldrücke sowie für die Durchlässigkeit, welche für den vorgesehenen Zweck die wichtigsten Eigenschaften darstellen. Der grösste Unterschied besteht in der Plastizität, indem MX-80 eine bedeutend höhere Fliessgrenze aufweist. Die Langzeitstabilität beider Materialien ist ähnlich, doch ist im mit Ca^{2+}-Ionen angereicherten Grundwasser Montigel vorzuziehen, da damit ein Ionenaustausch stark eingeschränkt wird und auch die Tendenz zur Illitisierung des Bentonits verringert wird.

Mit den heute vorliegenden Kenntnissen darf gesagt werden, dass sich Bentonit als Komponente in Bohrlochversiegelungen eignet, wobei dieser vor allem die Funktion als Dichtungsbarriere zu übernehmen hat. Insbesondere darf auch die Eignung des Ca-Bentonits "Montigel" in Ca-Ionen haltigem Grundwasser als gesichert betrachtet werden.

SUMMARY

This report first summarizes past investigations and presently available data on highly compacted Na-bentonite (MX-80) and Ca-bentonite (Montigel). The information has been collected mainly from research work reported from Sweden and Switzerland. Then the suitability of Ca-bentonite with respect to its use as a sealing material in boreholes for low and medium level nuclear waste repositories is evaluated.

The comparison of the two bentonites with respect to the characteristics relevant for sealing showed that most properties differ only little. This applies particularly to the swelling pressure and the permeability which may be considered the most important properties for sealing materials. The most significant difference is in the plasticity, with MX-80 having a much higher liquid limit than Montigel. The long-term stability is similar for both materials. However, with a groundwater rich in Ca^{2+}-ions, Montigel is preferred, because ion-exchange is minimized and also the tendency for illitization is decreased.

Based on the present knowledge, it can be concluded that highly compacted bentonite is a suitable material for a borehole plug. Its function will mainly be that of a highly impermeable barrier. In particular, it has been possible to convincingly establish the suitability of the Ca-bentonite Montigel in Ca^{2+}-rich groundwater.

RESUME

Ce rapport présente d'abord les recherches effectuées jusqu'à présent sur la bentonite sodique fortement compactée (MX-80) et sur la bentonite calcique (Montigel), ainsi que les données qui en résultent. Les documents sur lesquels on s'est basés sont presque tous des rapports de travaux ayant été réalisés en Suède et en Suisse. Un jugement est ensuite porté sur l'aptitude de la bentonite à servir de matériau de scellement dans des forages creusés pour le dépôt final de type B, c'est-à-dire pour déchets de faible et moyenne activité.

La comparaison des données sur MX-80 et sur Montigel, qui sont importantes pour le scellement, a montré que la plupart des propriétés de ces deux matériaux ne présentent que peu de différences. C'est ce qui s'applique aussi essentiellement aux pressions de gonflement susceptibles de se développer, ainsi qu'à la perméabilité, caractéristiques les plus importantes pour l'objectif prévu. La différence la plus grande consiste dans la plasticité, MX-80 présentant une limite apparente d'élasticité nettement plus élevée. La stabilité à long terme des deux matériaux est comparable, mais meilleure pour la bentonite calcique dans les eaux souterraines riches en ions Ca^{2+}, étant donné qu'un échange d'ions est ainsi fortement limité et que la tendance de la bentonite à se transformer en illite est réduite.

Les connaissances aujourd'hui disponibles permettent d'affirmer que la bentonite peut entrer dans l'élaboration des scellements de forage, ce matériau devant essentiellement assumer la fonction de barrière d'étanchéité. On peut notamment considérer aussi que l'aptitude de la bentonite Ca "Montigel" est garantie dans les eaux souterraines riches en ions Ca.

INHALTSVERZEICHNIS

		Seite
1.	EINLEITUNG	1
2.	UNTERSUCHUNGEN AN MONTIGEL, MX-80 UND METABENTONIT	3
2.1	Materialien	3
2.2	Untersuchungen zur Bestimmung mechanisch-physikalischer Eigenschaften	4
2.2.1	Kornverteilung	4
2.2.2	Konsistenzgrenzen	4
2.2.3	Dichte und Verdichtbarkeit	10
2.2.3.1	Dichte	10
2.2.3.2	Verdichtbarkeit	11
2.2.4	Festigkeitseigenschaften	14
2.2.5	Verformungsverhalten und rheologische Eigenschaften	15
2.2.6	Quelldruck	16
2.2.7	Durchlässigkeit für Wasser	23
2.2.8	Durchlässigkeit für Gase	26
2.2.9	Extrusionsfähigkeit	27
2.2.10	Erosionsbeständigkeit	28
2.3	Mineralogische und chemische Untersuchungen	29
2.3.1	Mineralstruktur von Montmorillonit	29
2.3.2	Chemische Daten von MX-80 und Montigel	33
2.3.2.1	Kationenaustauschkapazität und austauschbare Kationen	33
2.3.2.2	Mineralogische Zusammensetzung	34
2.3.2.3	Oberfläche	35

2.3.3	Mikrostruktur	36
2.3.4	Wasseraufnahme	38
2.3.5	Langzeitstabilität	41
2.3.5.1	Temperatur	43
2.3.5.2	Konzentration der Alkali- und Erdalkalionen	43
2.3.5.3	pH-Wert	44
2.3.5.4	Einfluss von Eisen	44
2.3.5.5	Radioaktive Strahlung	45
2.3.6	Sorptionseigenschaften	45
2.3.7	Ionendiffusion	47
2.4	Thermische Eigenschaften	52
3.	BEURTEILUNG DER VORHANDENEN DATEN	57
3.1	Anforderungsprofil für Versiegelungsmaterialien	57
3.2	Vergleich von Montigel mit MX-80	60
3.3	Bestehende Unsicherheiten	62
3.4	Eignungsbeurteilung von Ca-Bentonit aufgrund bisheriger Daten	62
4.	SCHLUSSFOLGERUNGEN	64
5.	LITERATURVERZEICHNIS	66

VERZEICHNIS DER FIGUREN

		Seite
Fig. 1	Kornverteilung von MX-80, Montigel und Montigel K	5
Fig. 2	Schrumpfverhalten von Tonen mit gebundenen Wasserschichten	7
Fig. 3	Schrumpfkurven für MX-80 und Montigel	9
Fig. 4	Statische Verdichtungskurven für MX-80	12
Fig. 5	Abhängigkeit der erreichten Trockendichte vom Pressdruck für MX-80, Montigel und Montigel K	13
Fig. 6	Quelldruck von vier Materialien in Abhängigkeit der reduzierten Trockendichte	20
Fig. 7	Gemessene Quelldrücke in Abhängigkeit der reduzierten Trockendichte und des einwirkenden Wasserdruckes	22
Fig. 8	Wasserdurchlässigkeit für Na- und Ca-Bentonit in Abhängigkeit der Feuchtdichte	25
Fig. 9	(a) Gitterbausteine SiO_4^{-2} Tetraeder und $Al(OH)_6^{-3}$ Oktaeder, (b) & (c) Elementarstruktur von Montmorillonit (Smektit) nach Hofmann, Endell & Wilm, (d) Struktur nach Edelmann & Favejee	30
Fig. 10	Mikrostruktur von (a) Na-Montmorillonit: dispers und aggregationsfrei, und (b) Ca-Montmorillonit: Domänen mit aggregierten parallelen Tonplättchen	37

Fig.11 (a) Mikrostruktur von lufttrockenem, hochverdichtetem Bentonit: sich berührende Aggregate mit Interaggregatpore, (b) Homogenisierung durch Quellen. 37

Fig. 12 Schichtabstand von MX-80 und Montigel in Abhängigkeit des Wassergehaltes 39

Fig. 13 Diffusionskoeffizienten verschiedener Ionen in MX-80 und Monitgel bei verschiedenen Wassergehalten 51

Fig. 14 Wärmeleitfähigkeit von MX-80, Montigel und Montigel K bei Raumtemperatur in Abhängigkeit der Dichte bei verschiedenen Wassergehalten. 54

Fig. 15 Vergleich Anforderungsprofil und Materialeigenschaftsprofil für die Versiegelung von Bohrlöchern mit Bentonit 59

Fig. 16 Vergleich zwischen MX-80 und Montigel im Hinblick auf deren Verwendung als Versiegelungsmaterialien in Schlüsselzonen von Bohrlöchern. 61

VERZEICHNIS DER TABELLEN

		Seite
Tabelle I	Konsistenzgrenzen von Bentonit	4
Tabelle II	Dichten	10
Tabelle III	Festigkeitswerte von hochverdichtetem Bentonit	14
Tabelle IV	Variationsbereiche der Einflussgrössen	18
Tablele V	Kationenaustauschkapazität und austauschbare Kationen von MX-80 und von Montigel	34
Tabelle VI	Mineralogische Zusammensetzung der Bentonite MX-80 und Montigel in Prozent der ofentrockenen Proben	34
Tabelle VII	Chemische Analyse der Funktion < 0.2 µm und Kaliumgehalt der unfraktionierten Bentonite MX-80 und Montigel	35
Tabelle VIII	Sorptionskoeffizienten K_d	46
Tabelle IX	Scheinbare Diffusionskoeffizienten, D_a, für gesättigten hochverdichteten Bentonit	49
Tabelle X	Porendiffusivität, D_p, für gesättigten hochverdichteten Bentonit	49
Tabelle XI	Scheinbare Diffusionskoeffizienten für ungesättigten, hochverdichteten Bentonit bei 25 % Wassergehalt	50

1. EINLEITUNG

Zahlreiche, vor allem in Schweden und in der Schweiz durchgeführte Versuche haben gezeigt, dass verdichtete Bentonite sich als Verfüll- und Versiegelungsmaterialien in Endlagern für radioaktive Abfälle eignen könnten. Hochverdichtete Bentonite quellen bei Zutritt von Wasser und werden dabei praktisch undurchlässig. Der Bentonit wirkt daher als effiziente Barriere zwischen den eingelagerten radioaktiven Stoffen und der Biosphäre.

In Schweden wird vor allem ein Natriumbentonit in Betracht gezogen, da das dortige Grundwasser reich an Natriumionen ist. Andererseits käme für schweizerische Verhältnisse, wo das Grundwasser an den meisten vorgesehenen Endlagerstandorten reich an Calciumionen ist, eher ein Calciumbentonit in Frage, um die Langzeitstabilität gewährleisten zu können.

An beiden Bentonitarten wurden zahlreiche Untersuchungen durchgeführt, nämlich einerseits um die mechanischen und chemischen Eigenschaften der Bentonite hinsichtlich ihrer Eignung für die Verwendung im Endlager zu überprüfen und andererseits um Vergleiche zwischen den Eigenschaften von Na- und Ca-Bentonit herstellen zu können. Im letzteren Fall sollen die Resultate zur Eignungsabklärung von Ca-Bentonit ausgewertet werden. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen sind in zahlreichen Berichte publiziert worden. Für Ca-Bentonit bilden vor allem die Berichte des Instituts für Grundbau und Bodenmechanik der ETH Zürich eine grundlegende Datenbasis.

Im vorliegenden Bericht wird zuerst eine Uebersicht über die durchgeführten Untersuchungen an Na- und Ca-Bentoniten sowie eine Zusammenstellung der zur Verfügung stehenden Resultate gegeben. Anschliessend wird die Eignung von Ca-Bentonit beurteilt und zwar spezifisch im Hinblick auf eine Verwendung als Versiegelungsmaterial in Bohrlöchern für Endlager des Typus B, d. h. für schwach und mittelaktive Abfälle. Dabei sollen auch bestehende Lücken in den bisherigen Kenntnissen aufgezeigt werden. Als mögliche Standorte für Endlager wurden von der NAGRA die Lokalitäten Oberbauen Stock, Bois de la Glaive und Piz Pian Grand

ausgewählt. Den Charakteristiken der Gesteinsarten an diesen Standorten muss bei der Eignungsabklärung eines Versiegelungsmaterials gebührend Rechnung getragen werden.

Es existieren allerdings bereits relativ ausführliche und gut dokumentierte, zusammenfassende Arbeiten über Bentoniteigenschaften (Studer et al, 1984, Grauer, 1985) jedoch ohne die Eignung von Ca-Bentonit im speziellen hervorzuheben.

Dieser Bericht wurde so geschrieben, dass er dem Leser eine Uebersicht über die Bentoniteigenschaften im Hinblick auf Endlagerprobleme vermitteln kann, ohne dass auf die zahlreichen Einzelarbeiten zurückgegriffen werden muss.

2. UNTERSUCHUNGEN AN MONTIGEL, MX-80 UND METABENTONITEN

2.1 Materialien

Montigel stammt aus Bayern und ist ein Ca-Bentonit. Er wird sowohl als Pulver wie auch als Granulat (Montigel K) geliefert. Letztere Form ist ein sekundäres Granulat. Es wird durch Verdichten des pulverförmigen, gemahlenen Montigels zwischen Walzen und anschliessendem Sieben erzeugt (Müller-Vonmoos & Kahr, 1982).

MX-80 ist ein Na-Bentonit und wird in Wyoming, USA, abgebaut. Er wird als Granulat geliefert. Dies ist ein primäres Granulat, welches aus grubenfrischem Ton durch Trocknen und anschliessendem Zerkleinern und Sieben gewonnen wird. Der Feinanteil wird anderweitig verwertet. Das MX-80 Granulat enthält daher im Gegensatz zum Montigel nicht den ganzen Bentonitanteil und seine Zusammensetzung kann deshalb leicht ändern.

Metabentonit Proben wurden in der Grube von Stora Mossen bei Kinnekulle in Südwest-Schweden gewonnen. Dieser Metabentonit besteht aus Wechsellagerungen von Smektit und Illit. Er wurde vor rund 450 Millionen Jahren im Ordovizium als vulkanische Asche abgelagert (Müller-Vonmoos & Kahr, 1985).

An den Materialien Montigel und MX-80 wurden zahlreiche mechanisch-physikalische und mineralogisch-chemische Untersuchungen durchgeführt, um vor allem den Unterschied in den für die Versiegelung massgebenden Eigenschaften feststellen zu können. Die Untersuchungen am Metabentonit dienten vor allem der Beurteilung der Langzeitstabilität von Bentonit. Eingehende Untersuchungen an MX-80 Bentonit wurden auch in Schweden durchgeführt.

2.2 Untersuchungen zur Bestimmung mechanisch-physikalischer Eigenschaften

2.2.1 Kornverteilung

Zur Bestimmung der Kornverteilung wurde lufttrockener Bentonit in Calgonlösung mit Ultraschall dispergiert. Die Fraktion > 63 µm wurde anschliessend durch Nassieben abgetrennt. Die Bestimmung der Anteile zwischen 20 und 2 µm wurde mit dem Pipetten Apparat (Müller-Vonmoos, 1971) durch Schlämmen und Annahme eines spezifischen Gewichts von 2.65 durchgeführt. Die Fraktion < 0.2 µm wurde nach Vorbehandlung durch wiederholtes Zentrifugieren und Beschallen abgetrennt (Müller-Vonmoos & Kahr, 1983).

Die Kornverteilung ist in Fig. 1 wiedergegeben. Der Anteil der Tonfraktion (< 2µm) beträgt für MX-80 etwa 76 - 78 %, für Montigel liegt er zwischen 70 und 77 %. Pusch (1983 b) berichtet, dass bei Bentoniten aus Wyoming und South Dakota der Anteil der Tonfraktion zwischen 85 and 90 % beträgt.

2.2.2 Konsistenzgrenzen

Die Konsistenzgrenzen nach Atterberg sind in Tabelle I zusammengefasst. Die Fliessgrenzen wurden mit dem Fallkonusapparat (Karlsson, 1981) ermittelt. Die Methode mit dem Klopfapparat nach Casagrande erwies sich bei den hohen Wassergehalten als nicht genügend genau.

Tabelle I: Konsistenzgrenzen von Bentonit

Konsistenzgrenze	Material			Referenz
	MX-80	Montigel	Montigel K	
Fliessgrenze, w_L	411 ± 10	130 ± 3	160 ± 10	Müller-Vonmoos & Kahr (1982)
Plastizitätsgrenze, w_P	47	50 (Ca-montmorillonite)		Pusch (1983 b)
Schrumpfgrenze, w_S	14	18	-	Bucher et al (1985)

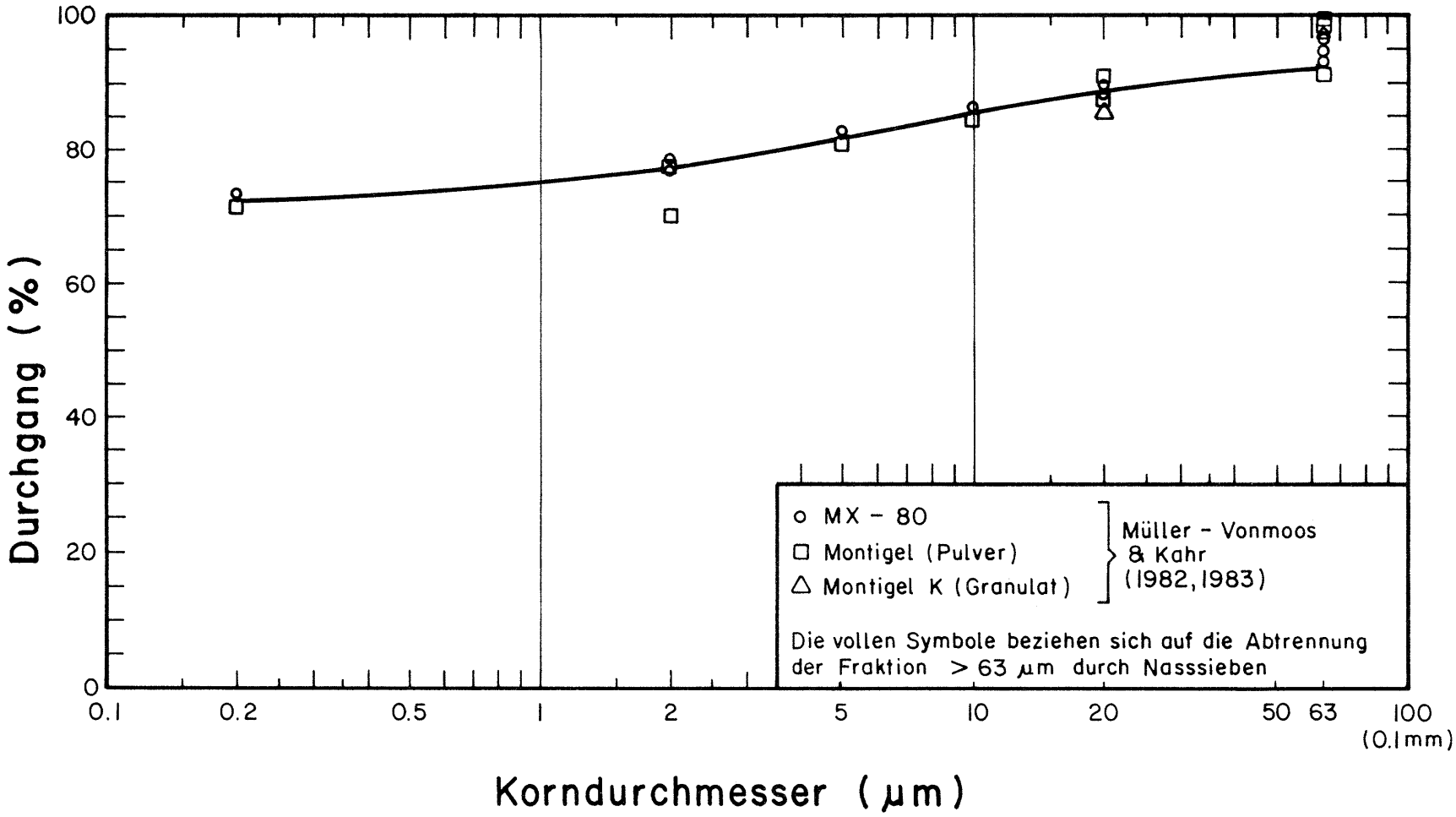


Fig. 1 Kornverteilung von MX-80, Montigel und Montigel K (Daten aus Müller-Vonmoos & Kahr, 1982, 1983)

Die Fliessgrenze hängt stark von der Art und den relativen Anteilen der austauschbaren Kationen ab. Die in der Literatur angegebenen w_L-Werte für Na-Bentonite variieren denn auch zwischen etwa 350 und 700%. Für Ca-Bentonite liegen die Werte zwischen etwa 125 und 170 % (Meyer & Howard, 1983 b; Pusch, 1983 b).

Bis jetzt wurden keine Werte für die Plastizitätsgrenze (Ausrollgrenze) an Montigel bestimmt. Pusch (1983 b) gibt für Ca-Montmorillonit einen w_P-Wert von 50 % an. Bedeutend höhere Werte, nämlich 63 - 65 %, werden von Meyer & Howard (1983) und Grim & Güven (1978) zitiert. Für Na-Smectite steigen diese Werte sogar auf 89 - 97 %. Diese Werte scheinen eher hoch. Seed et al (1964) geben für die Plastizitätsgrenze einen oberen Wert von etwa 50 % an.

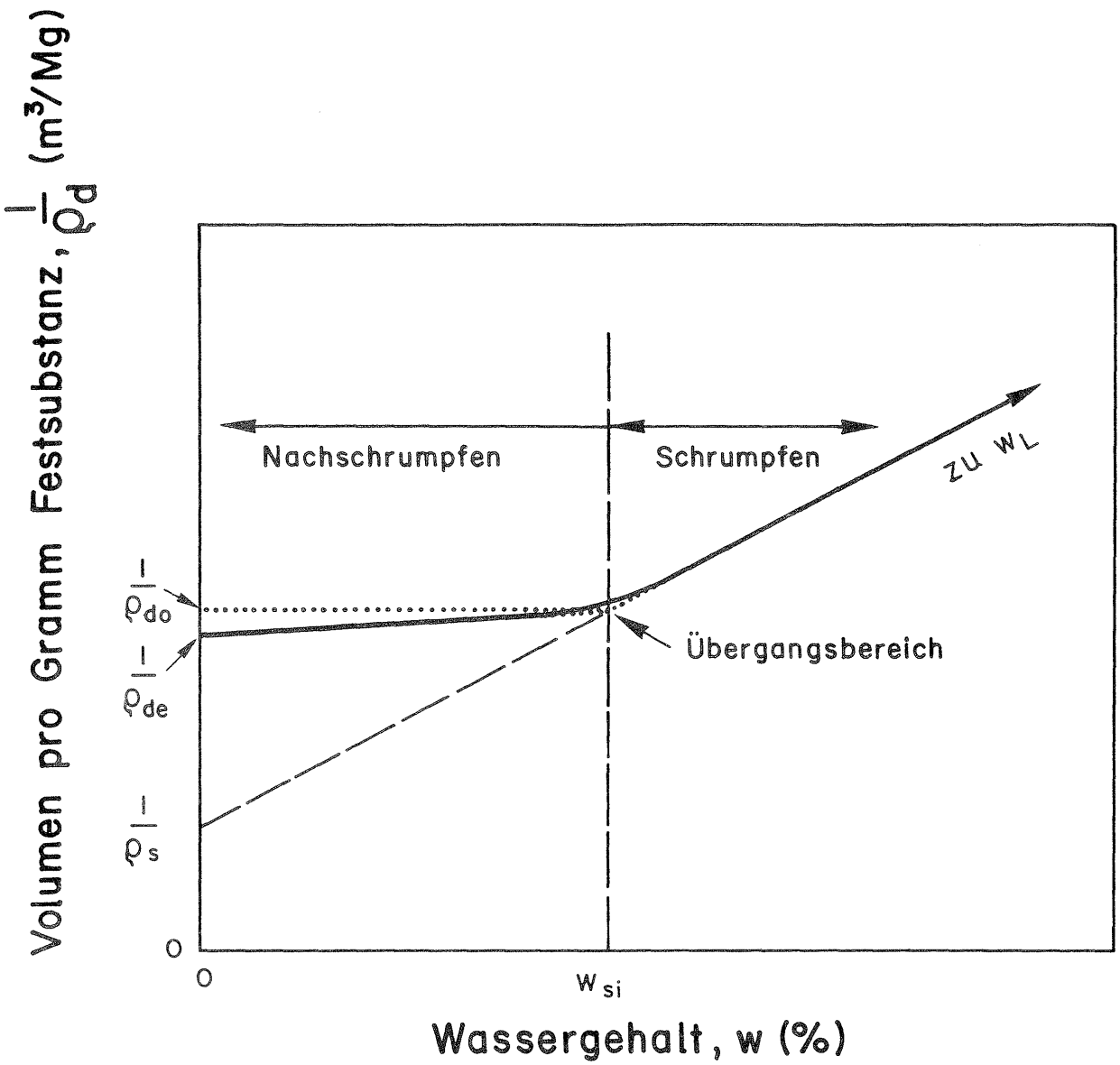
Die in Tabelle I angegebenen Werte für die Schrumpfgrenze wurden durch Austrocknen ab Fliessgrenze bestimmt. Die Schrumpfgrenze ist definitionsgemäss jener Wassergehalt, bei welchem eine bindige, gesättigte Materialprobe beim Austrocknen ihr minimales Volumen erreicht. Ein weiterer Wasserverlust sollte theoretisch zu keiner weiteren Volumenverminderung führen (Tezaghi & Peck, 1967). Dies ist schematisch in Fig. 2 dargestellt.

In Wirklichkeit wird aber bei Tonen mit stark gebundenen Wasserschichten ein Nachschrumpfen beobachtet, d. h. eine Volumenverminderung auch im ungesättigten Bereich. Dadurch ist die Schrumpfgrenze nicht mehr eindeutig bestimmbar und der Schnittpunkt, der mehr oder weniger geradlinigen Abschnitte im Schrumpf- und Nachschrumpfbereich wird als idealisierte Schrumpfgrenze, w_{si}, bezeichnet.

Bucher et al (1985) haben das Nachschrumpfen durch die Steilheit der Kurve

$$s = \Delta V/V_w \qquad (1)$$

quantifiziert, wobei ΔV die Volumänderung beim Nachschrumpfen und V_w das totale Wasservolumen zu Beginn des Nachschrumpfens bedeuten.



ρ	=	Feuchtdichte
ρ_d	=	Trockendichte = $\rho / (1 + w)$
ρ_{do}	=	Trockendichte zu Anfang des Nachschrumpfens
ρ_{de}	=	Trockendichte am Ende des Nachschrumpfens
ρ_s	=	spezifische Dichte
w	=	Wassergehalt
w_{si}	=	idealisierte Schrumpfgrenze

Fig. 2 Schrumpfverhalten von Tonen mit gebundenen Wasserschichten (Bucher et al, 1985)

Mit den in Fig. 2 gegebenen Grössen kann das Nachschrumpfen s als

$$s = \frac{\rho_w}{w_{si}} \left(\frac{1}{\rho_{do}} - \frac{1}{\rho_{dE}}\right) \qquad (2)$$

ausgedrückt werden. Für praktische Zwecke ist es oft vorteilhafter, das Nachschrumpfmass s' einzuführen, welches die Volumänderung der Probe beim Nachschrumpfen auf das gesamte Probenvolumen bei Beginn des Nachschrumpfens, V_{po}, bezieht ($s' = \Delta V/V_{po}$). Mit den in Fig. 2 definierten Trockendichten ergibt dies:

$$s' = 1 - \frac{\rho_{do}}{\rho_{dE}} \qquad (3)$$

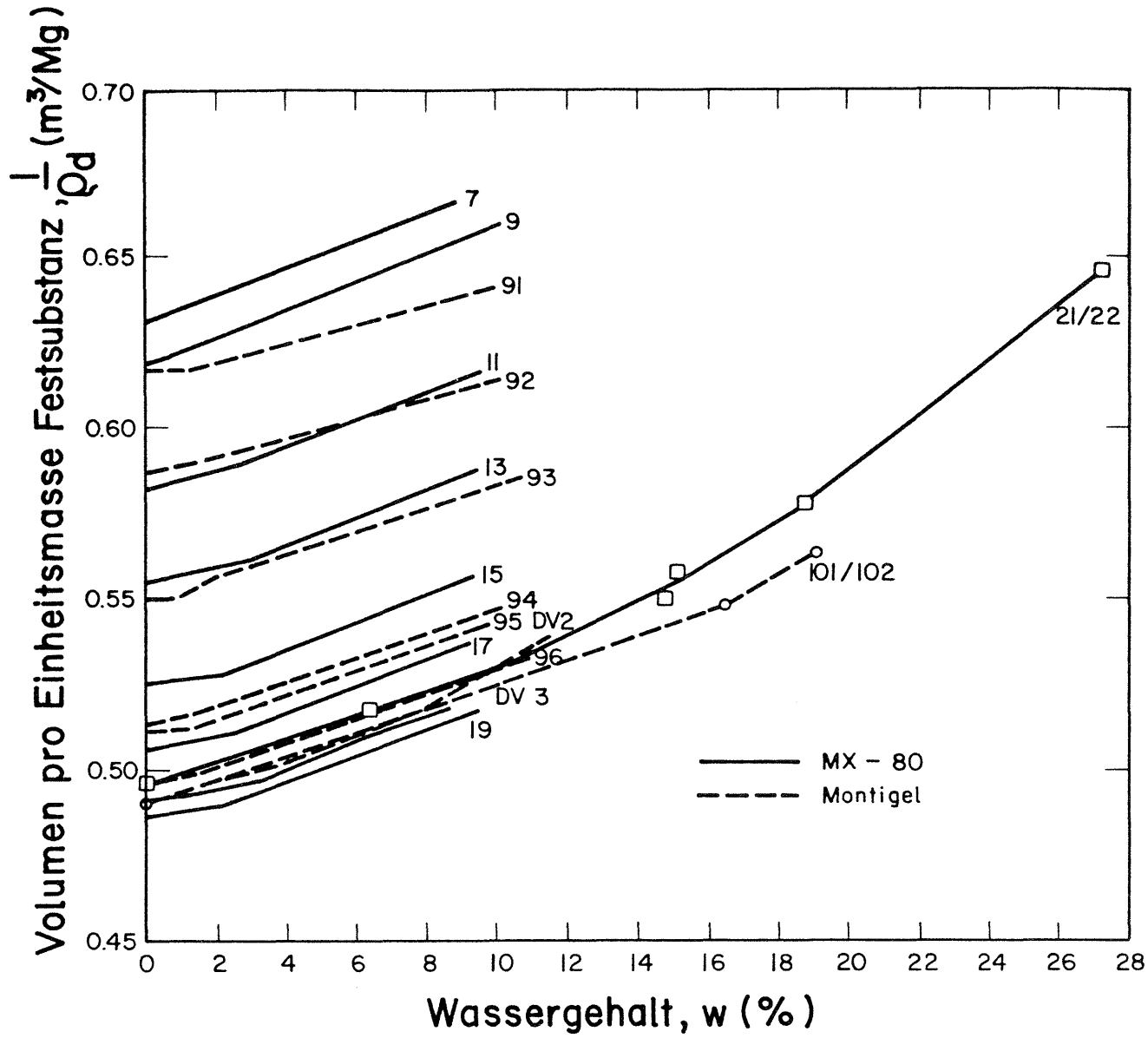
Aus den Beziehungen (2) und (3) erhält man dann:

$$s = \frac{s'}{w_{si}} \frac{\rho_w}{\rho_{do}} \qquad (4)$$

Bucher et al (1985) untersuchten auch das Schrumpfverhalten an einaxial und isotropisch verdichteten MX-80 und Montigel Proben. Die Trockendichten bei Versuchsbeginn lagen zwischen 1.53 und 1.98 Mg/m3 und der Wassergehalt zwischen 7.7 und 16.4 %. Letzterer lag also deutlich unterhalb der in Tabelle I angegebenen Werte für die Schrumpfgrenze. Die Volumenbestimmung erfolgte mittels Quecksilbertauchwägung. Versuchsergebnisse sind in Fig. 3 wiedergegeben.

Es wurde festgestellt, dass innerhalb der Messgenauigkeit die Schrumpfung s weder von der Verdichtungsart noch vom untersuchten Material, noch von der Trockendichte bei Versuchsbeginn abhängt und Werte zwischen 32 und 38 % annimmt. Dies ist auch aus der Parallelität der Schrumpfkurven in Fig. 3 ersichtlich. Diese Feststellung erlaubt das Nachschrumpfmass s' aus

$$s' = s\ w\ \rho_d\ /\ \rho_w \qquad (5)$$



Versuchs-Nr.	Verdichtungsart	Trockendichte bei Versuchsbeginn (Mg/m^3)	Wassergehalt bei Versuchsbeginn (%)	Trockendichte bei Versuchsende (Mg/m^3)
7	einaxial	1.53	8.7	1.59
9	einaxial	1.55	9.9	1.62
91	einaxial	1.56	9.8	1.62
11	einaxial	1.65	9.4	1.72
92	einaxial	1.63	9.9	1.70
13	einaxial	1.74	9.3	1.80
93	einaxial	1.71	10.5	1.82
15	einaxial	1.83	9.2	1.90
94	einaxial	1.82	10.0	1.95
95	einaxial	1.84	9.8	1.96
17	einaxial	1.90	9.2	1.97
DV2	isostatisch	1.86	11.1	2.03
21/22	ab Fliessgrenze	0.16	580	2.02
96	einaxial	1.88	10.5	2.02
101/102	ab Fliessgrenze	0.58	140	2.04
DV3	isostatisch	1.93	8.3	2.03
19	einaxial	1.98	9.3	2.05

Fig. 3 Schrumpfkurven für MX-80 und Montigel (Daten aus Bucher et al, 1985)

mit s = (36 ± 4) % zu berechnen. Dabei ist w der Wassergehalt bei Schrumpfbeginn und ρ_d die entsprechende Trockendichte.

Eine interessante Feststellung aus Fig. 3 ist auch, dass nur mit ganz hochverdichteten Proben Endtrockendichten erreicht wurden, die noch etwas höher waren als die der Proben, welche ab der Fliessgrenze geschrumpft wurden.

2.2.3 Dichte und Verdichtbarkeit

2.2.3.1 Dichte

Die spezifische Dichte von MX-80 und Montigel wurde mit der Pyknometermethode bestimmt. Andererseits wurde auch die kristallographische Dichte des Montmorillonites in den Bentoniten aus dem Volumen und dem Gewicht der Elementarzelle berechnet (Müller-Vonmoos & Kahr, 1983). Die Werte sind in Tabelle II wiedergegeben.

Tabelle II: Dichten

Bentonitart	spezifische Dichte (Mg/m3)	kristallographische Dichte des Montmorillonits (Mg/m3)
MX-80	2.76	2.78
Montigel	2.85	2.79

Vergleichbare Werte werden auch in der Literatur zitiert. Deeds & Van Olphen (1961) geben für Wyoming Bentonit eine pyknometrisch bestimmte Dichte von 2.79 Mg/m3 und eine berechnete kirstallographische Dichte von 2.80 Mg/m3. Pusch (1978) erwähnt, dass für Montmorillonit Dichtewerte zwischen 2.4 und 2.8 Mg/m3 gemessen wurden. Die Streuung ist bedingt durch die unterschiedliche Definition des fest an das Kristallgitter gebundenen Wasseranteils. Als Durchschnittswert wird 2.7 Mg/m3 empfohlen.

2.2.3.2 Verdichtbarkeit

Da in gewissen Versiegelungskonzepten hochverdichteter Bentonit vorgesehen ist, spielt die Verdichtbarkeit eine wichtige Rolle. Die zur Verdichtung notwendigen hohen Pressdrücke erfordern spezielle Einrichtungen. Die konventionellen, in geotechnischen Laboratorien verwendeten Verdichtungsgeräte sind nicht geeignet.

Bucher et al (1982) entwickelten eine Verdichtungsmulde, welche einaxiale statische Verdichtung mit Drücken bis 800 MN/m2 erlaubt, und untersuchten den Zusammenhang zwischen den Variablen Einbauwassergehalt, Pressdruck und erreichte Trockendichte an den Materialen MX-80, Montigel und Montigel K. Figur 4 zeigt statische Wassergehalt-Dichte Kurven an MX-80 für Pressdrücke von 100 und 200 MN/m2. Für diesen Bereich liegt der optimale Wassergehalt zwischen 3 und 8 %.

Bucher et al (1982) stellten fest, dass der Einbauwassergehalt eine grosse Rolle spielt, wenn die Pressdrücke hoch sind. Bei einem Einbauwassergehalt von 5 % nimmt dann der erforderliche Pressdruck um eine bestimmte Trockendichte zu erreichen mit steigendem Wassergehalt stark zu. Die erreichbare Trockendichte nimmt entsprechend mit zunehmendem Einbauwassergehalt ab. Für Pressdrücke unterhalb etwa 50 MN/m2 hat der Wassergehalt einen geringen Einfluss auf das Verdichtungsverhalten. Die Unterschiede in der erzielten Dichte entsprechen dann etwa der Streuung der Versuchsresultate bei nur einem Wassergehalt unter hohen Pressdrücken.

Umhüllende Kurven von Versuchsresultaten mit den drei Materialien MX-80, Montigel und Montigel K sind in Fig. 5 enthalten. Nach diesen Ergebnissen lässt sich der MX-80 Bentonit bei gleichen Pressdrücken etwas höher verdichten. Interessant ist auch die Beobachtung, dass die Herstellung von Proben gleicher Trockendichte beim pulverförmigen Montigel einen etwa zweifach höheren Pressdruck erfordert als bei der Granulatform Montigel K.

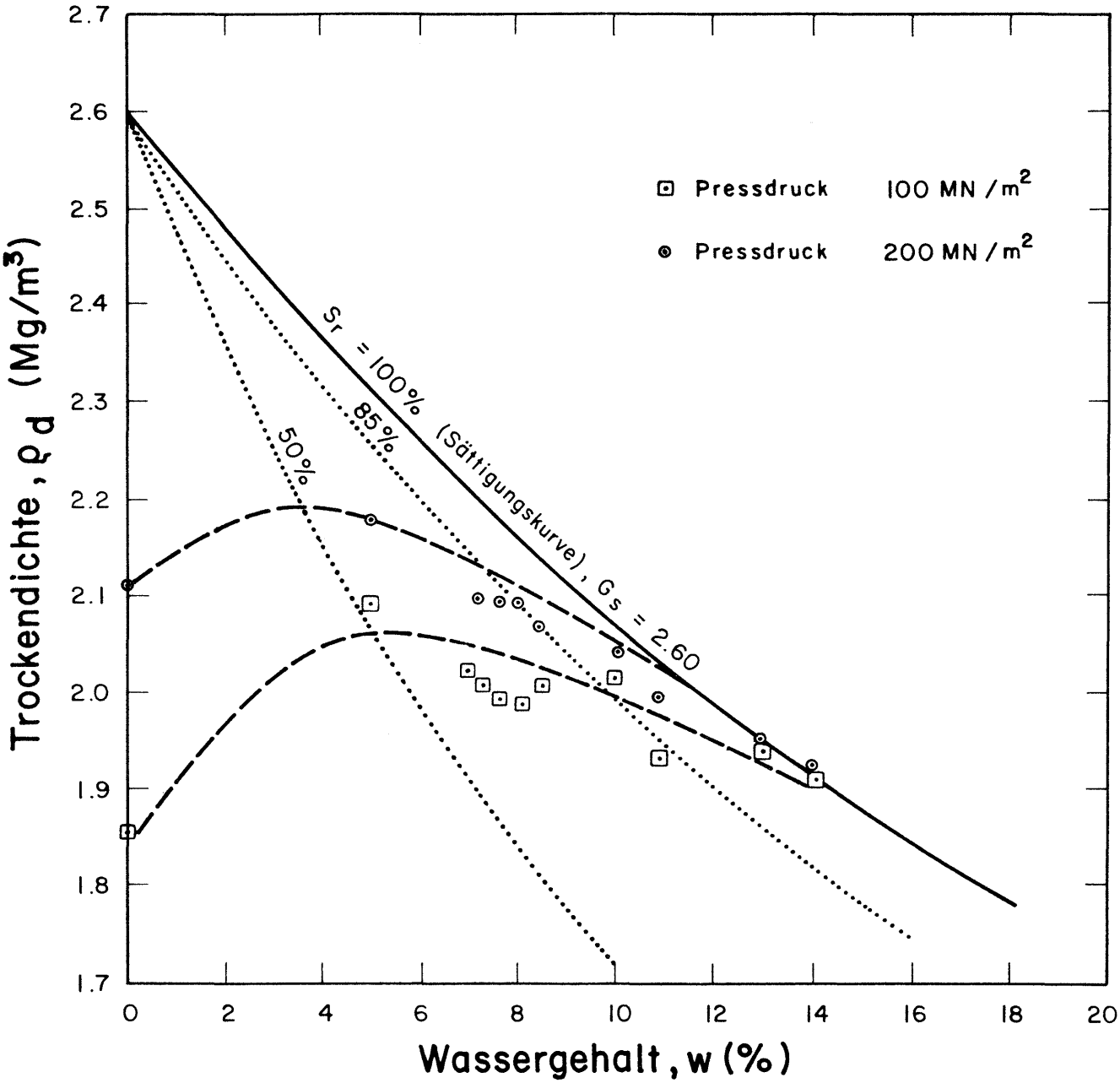


Fig. 4 Statische Verdichtungskurven für MX-80 (Bucher et al, 1982)

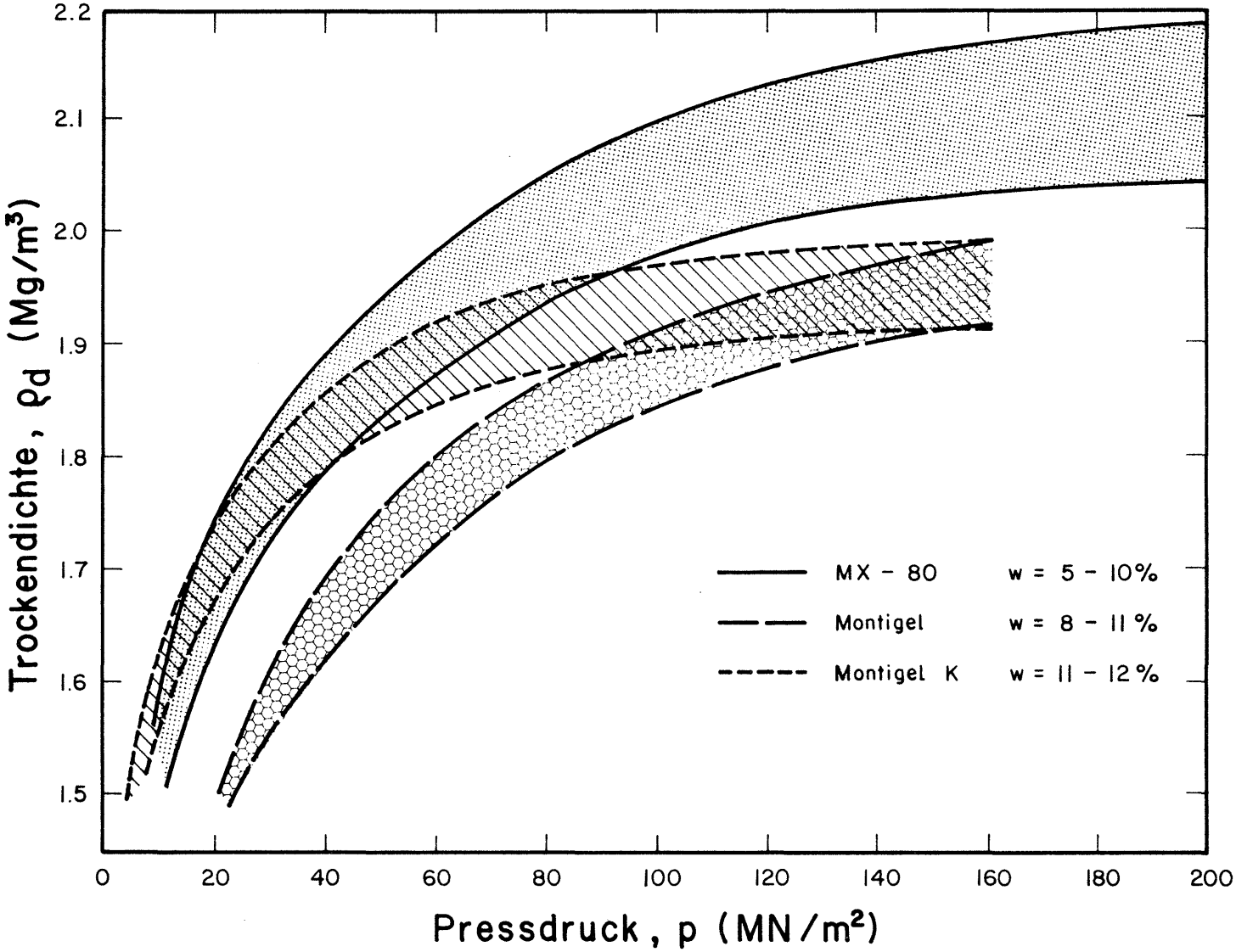


Fig. 5 Abhängigkeit der erreichten Trockendichte vom Pressdruck für MX-80, Montigel und Montigel K (Daten aus Bucher et al, 1982)

Bucher et al (1982) untersuchten auch die Homogenität der verdichteten Proben und zwar mittels Röntgenstrahlen und mit Hilfe von Quecksilberverdrängung im Druckporosimeter. Die Resultate an Teilstücken der Probe ergaben nur sehr geringe Unterschiede, so dass die verwendete Verdichtungsmethode Probestücke mit guter Homogenität zu produzieren vermag.

2.2.4 Festigkeitseigenschaften

Die Festigkeitseigenschaften von hochverdichtetem Bentonit sind für die Handhabung während des Einbringens von Bedeutung. Daten über Druck- und Scherfestigkeitsparameter sind jedoch spärlich. Studer et al (1984) geben Richtwerte die in Tabelle III wiedergegeben sind.

Tabelle III: Festigkeitswerte von hochverdichtetem Bentonit (Studer et al, 1984, nach unveröffentlichten Angaben des Institutes für Grundbau und Bodenmechanik der ETH Zürich).

Kennwert	gemessene Werte an MX-80 und Montigel mit $\rho_d \approx 1.6\text{-}1.8$ Mg/m3	Bemerkungen
σ_{Druck}	16 MN/m2	Einfacher Druckversuch
σ_{Zug}	0.6 MN/m2	Brasilianerversuch
Φ	16 - 18°	Für Seitendrücke < 50 MN/m2 u. w = 0 % Triaxial Versuch
c	20 - 22 MN/m2	
Φ	ca. 25°	Für Seitendrücke < 50 MN/m2 u. w = 7 - 10 % Triaxial Versuch
c	13 - 17 MN/m2	
Φ	ca. 6°	nach Quellung

Für die undrainierte Scherfestigkeit von gesättigtem verdichtetem Na-Bentonit (MX-80) mit einer Feuchtdichte von 2 Mg/m3 gibt Pusch (1983 c) einen Bereich von 0.4 - 2.5 MN/m2 an.

2.2.5 Verformungsverhalten und rheologische Eigenschaften

Das Verformungsverhalten von hochverdichtetem Bentonit wird vor allem durch das Trockenraumgewicht und den Wassergehalt bestimmt. Für MX-80 mit einer Feuchtdichte von 2.0 Mg/m3 variiert nach Pusch (1983 b) der Elastizitätsmodul zwischen 100 und 1000 MN/m2. Typische Werte sind von der Grössenordnung 300 MN/m2. Für die Poisson Zahl ν kann ein Wert von 0.15 angenommen werden. Diese Werte wurden aus einaxialen Zusammendrückungsversuchen ermittelt. Ueber die Zusammendrückbarkeit unter verhinderter Seitendehnung liegen keine Versuchsresultate vor. Diese ist natürlich für Drücke, welche unter dem ursprünglichen Pressdruck liegen, äusserst gering.

Ueber das Kriechverhalten von hochverdichtetem Bentonit ist bis jetzt wenig bekannt. Für die Beurteilung gewisser Vorgänge, wie Selbstheilung von Rissen im Bentonit oder das Auspressen in Klüfte und Spalten in der Bohrlochwand haben solche Daten eine gewisse Bedeutung. Pusch (1983 c) interpretierte experimentelle Kriechkurven mittels eines auf statistischer Mechanik basierenden Modells. Dieses nimmt an, dass makroskopisch sichtbare Kriechverformungen durch Verschiebungen in den interpartikularen und intrapartikularen starkgebundenen Wasserschichten als Folge thermisch aktivierter Prozesse stattfinden. Die Kriechgeschwindigkeit nimmt mit zunehmender Temperatur zu. Pusch et al (1983 c) empfehlen folgendes Kriechgesetz

$$\dot{\varepsilon} = \beta T D \frac{1}{t+to} \qquad (6)$$

wobei:

$\dot{\varepsilon}$ = Kriechgeschwindigkeit
β = Konstante
D = Spannungsdeviator
t = Zeit
t_o = Startzeit
T = Kelvin Temperatur

Für $t >> t_o$ erhält man die Kriechverformung als:

$$\varepsilon = \beta TD \ln t \qquad (7)$$

Für Na-Bentonit (MX-80) mit einer Feuchtdichte von etwa 1.9 Mg/m3, und bei Temperaturen, die nicht allzu stark von der Raumtemperatur abweichen, ergab sich aus Versuchen für die Konstante ß ein Wert von $3.6 \cdot 10^{-9}$. Dabei muss D in kN/m2 eingesetzt werden.

2.2.6 Quelldruck

Die Quellfähigkeit von Bentoniten ist eine der wesentlichen Eigenschaften, welche zur Auswahl dieser Materialien als möglicher Kandidat zur Lösung von Versiegelungsproblemen geführt haben. Durch Quellen bei Wasserzutritt hat das Material die Möglichkeit, sich Unebenheiten in der Bohrlochwand anzupassen, in Risse und Spalten einzudringen, und auch kleine Risse im Material selbst durch "Selbstheilung" auszumerzen. Dadurch ist eine möglichst wirksame Barrierenwirkung gewährleistet. Durch das Quellen wird auch eine Homogenisierung im Mikrobereich erzielt.

Bucher & Spiegel (1984) präsentierten Daten von 121 Quellversuchen, welche vom IGB der ETH Zürich an den Materialien MX-80, Montigel (Pulver), Metabentonit und Illit durchgeführt wurden. Die Quellversuche wurden in einer speziellen Apparatur an hochverdichteten Proben von 56 mm Durchmesser und ca. 26 mm Höhe gemessen. Der Zweck der Versuche bestand darin, die Abhängigkeit des Quelldruckes von verschiedenen Einflussgrössen zu untersuchen, nämlich:

- der Trockendichte
- der Temperatur
- der Materialart
- der zugelassenen Volumendeformation während der Wasseraufnahme
- der Ionenart des Wassers
- des Wasserdruckes

- der Verdichtungsart
- des Versuchsablaufes
- der Zeit
- der Messeinrichtung

Als wichtigste Variable diente die Trockendichte. Es zeigte sich als zweckmässig, die Resultate in Abhängigkeit der sog. reduzierten Trokkendichte, ρ_{dred}, aufzutragen. Die reduzierte Trockendichte wird definiert als das Verhältnis von Trockenmasse M_{tr} zum Gesamtvolumen des Probekörpers nach erfolgter zugelassener Volumendeformation

$$\rho_{dred} = \frac{M_{tr}}{V_o + \Delta V} \qquad (8)$$

wobei V_o das Volumen des Probekörpers vor dem Quellen und ΔV die zugelassene Volumenzunahme infolge Quellen bedeuten. Die Einführung der reduzierten Trockendichte erlaubt den Einfluss der zugelassenen Volumendeformation zu eliminieren.

In Tabelle IV sind die Variationsbereiche der verschiedenen Einflussgrössen, sowie die dazu verwendeten Materialien zusammengestellt.

Tabelle IV Variationsbereiche der Einflussgrössen

Einflussgrösse	Variationsbereich	in den Versuchen verwendete Materialien
Trockendichte, ρ_d	1.50 - 2.11 Mg/m3	MX-80, Montigel, Metabentonit, Illit
Volumendeformation, ΔV	0 - 121 %	MX-80, Montigel
Red. Trockendichte, ρ_{dred}	0.96 - 2.03 Mg/m3	MX-80, Montigel, Metabentonit, Illit
Temperatur während Quellen	20° - 150°C	MX-80, Montigel, Illit
Vorheizen auf 150°C	- ohne - mit	MX-80, Montigel
Zwischenaustrocknung	Austrocknen bei 150°C	MX-80, Montigel, Illit
Wasserdruck	0 - 10 MN/m2	MX-80, Metabentonit, Illit
Ionenart im Wasser	- entmineralisiert - Säckinger Wasser (stark Na-haltig)	MX-80
Verdichtungsart	- einachsig - allseitig (triax.)	MX-80, Montigel
Zeit (Versuchsdauer)	4 Tage - 9 Monate	MX-80, Montigel, Metabentonit, Illit Langzeitversuche: MX-80, Montigel
Chem./mechanische Behandlung der Probe	- Beschallen - Soda Behandlung	Metabentonit
Versuchsablauf	Serien 1 + 2	MX-80, Montigel, Metabentonit, Illit

In den in Tabelle IV erwähnten Serien 1 + 2 wurde versucht, die Grössen Temperatur und Wasserdruck so zu variieren, dass sie die Bedingungen in einem Endlager simulieren, d. h. (1) zu Beginn hohe Temperaturen (150° oder 90°C), (2) zu Beginn kein Wasser und (3) mit der Zeit abnehmende Temperatur (auf 20°C) und zunehmender Wasserdurck (0.6 und 10 MN/m2).

Die wichtigsten Erkenntnisse, welche aus den Versuchsdaten abgeleitet werden können, sind die folgenden:

(1) **Einfluss des Materials:** Von den vier untersuchten Materialien wurde oberhalb einer reduzierten Trockendichte von etwa 1.7 Mg/m3 mit Montigel der höchste Quelldruck erzielt. Dies ist aus Fig. 6 ersichtlich. Die Kurven in dieser Figur basieren auf Messpunkten, die in Fig. 7 eingetragen sind (ausgenommen diejenigen für Metabentonit). Man erkennt, dass Metabentonit die niedrigsten Werte erreichte, jedoch konnte durch Ultraschallbehandlung eine Steigerung des Quelldruckes erzielt werden. Das Quellverhalten des Metabentonites ist für die Beurteilung des Langzeitverhaltens von Bentonit von Interesse.

(2) **Einfluss der Temperatur:** Eine Erhöhung der Temperatur bewirkt eine Reduktion des Quelldruckes, wenn das Quellen zuerst bei Raumtemperatur erfolgt. Bei Wiederherstellung der Raumtemperatur nach erfolgter Erwärmung ist der Quelldruck um etwa 30 % niedriger als der ursprüngliche Wert. Bei abermaligem Erhitzen ergibt sich dann aber eine Druckerhöhung. Der dabei erreichte Wert ist aber nicht grösser als derjenige, welcher beim vorherigen Zyklus bei der entsprechenden Temperatur gemessen wurde.

Wird eine Probe vorgeheizt und dabei getrocknet, so hat die Heiztemperatur praktisch keinen Einfluss auf spätere Quelldrücke. Andererseits ergibt sich aber nach einer Zwischenaustrocknung durch Heizen bei einer erneuten Quellung ein kleinerer Quelldruck als ursprünglich. MX-80 und Montigel zeigen bezüglich Temperatureinflüssen ein ähnliches Verhalten.

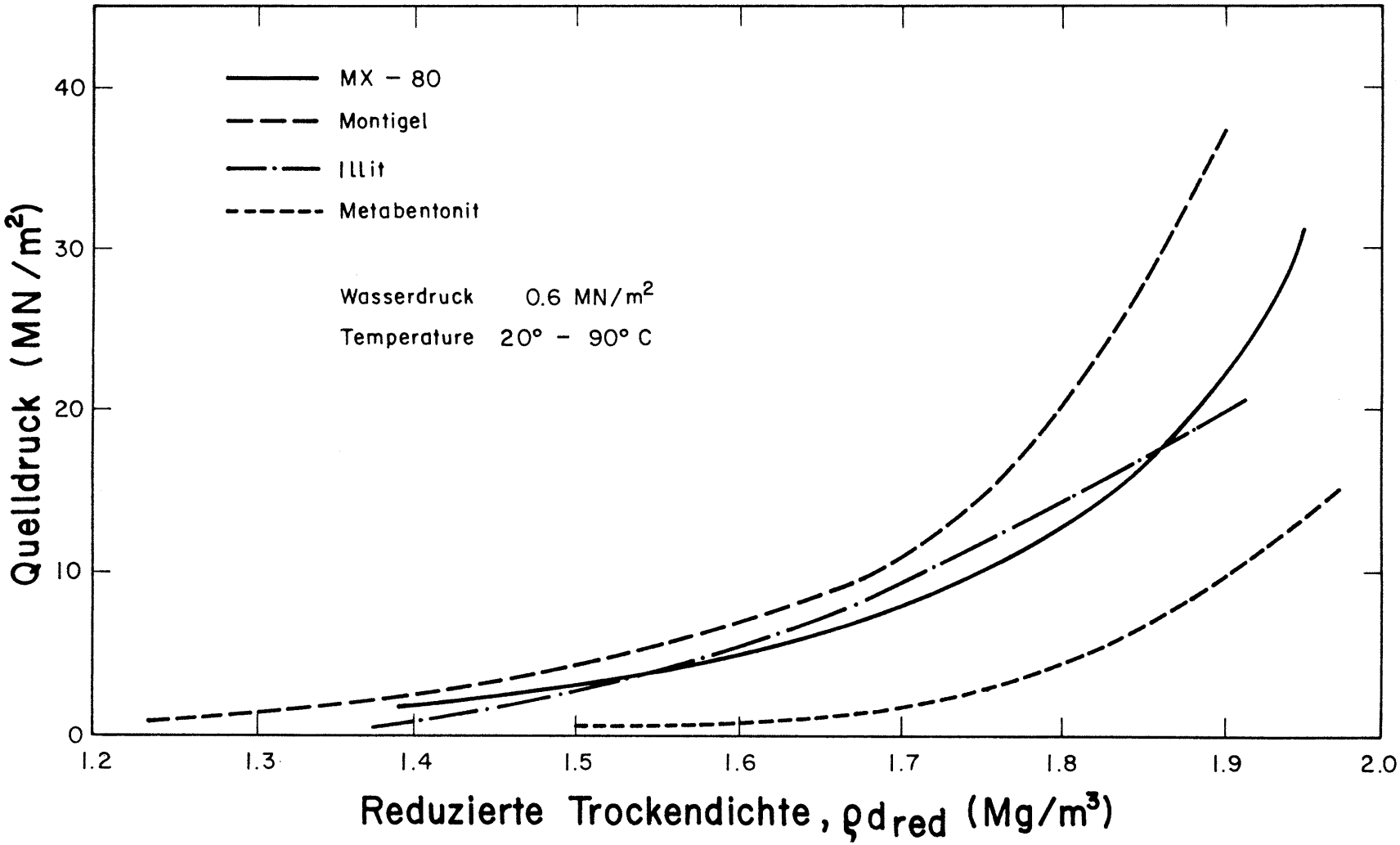


Fig. 6 Quelldruck von vier Materialien in Abhängigkeit der reduzierten Trockendichte (Daten aus Bucher & Spiegel, 1984)

(3) **Einfluss des Wasserdruckes (Fig. 7):** Eine Erhöhung des angebrachten Wasserdruckes, Δp hat eine Erhöhung des gemessenen Quelldruckes um Δq zur Folge. Die Quelldruckzunahme ist aber im allgemeinen geringer als das Wasserdruckinkrement, d. h.

$$\Delta q = A^* \cdot \Delta p \qquad (9)$$

wobei der Koeffizient A^* Werte zwischen etwa 0.6 und 1.0 annimmt. A^* nimmt mit zunehmender Dichte ab. Ferner ist A^* für MX-80 nur etwa 0.1 höher als für Montigel. Figur 7 zeigt, dass wenn der Wasserdruck von 0.6 MN/m2 auf 10 MN/m2 erhöht wurde, der durch die zwei Grenzkurven angedeutete Bereich der Messpunkte fast parallel, jedoch mit einer kleinen Rotation im Uhrzeigersinn, nach oben verschoben wurde.

(4) **Einfluss der gelösten Ionen im Wasser:** Neben entmineralisiertem Wasser wurde auch stark Na-haltiges Wasser, sogenanntes "Säckinger-Wasser", für die Quellversuche verwendet. Es konnten keine signifikanten Unterschiede im gemessenen Quelldruck festgestellt werden. Dies gilt für MX-80 wie auch für Illit. Für Montigel wurde eine umgewandelte Form untersucht, bei welcher die Ca-Ionen durch Na-Ionen ausgetauscht wurden. Im Vergleich zur Normalform war der Unterschied ebenfalls unbedeutend.

(5) **Einfluss der Verdichtungsart:** Proben von MX-80 und Montigel wurden einaxial wie auch triaxial isostatisch verdichtet. Die Resultate zeigten, dass für die verwendeten Trockendichten die Quelldrücke der isostatisch verdichteten Proben etwa 5 - 10 % niedriger waren als für die einaxial verdichteten. Allerdings muss hier erwähnt werden, dass mit der verwendeten Apparatur der Quelldruck nur einaxial gemessen wird. Würde der Druck auch auf der Seite erfasst, so könnten allseitig verdichtete Proben eventuell einen höheren Seitendruck als die einaxial verdichteten Proben zeigen. Eine eventuelle Anisotropie des Quelldruckes wurde bis anhin nicht untersucht.

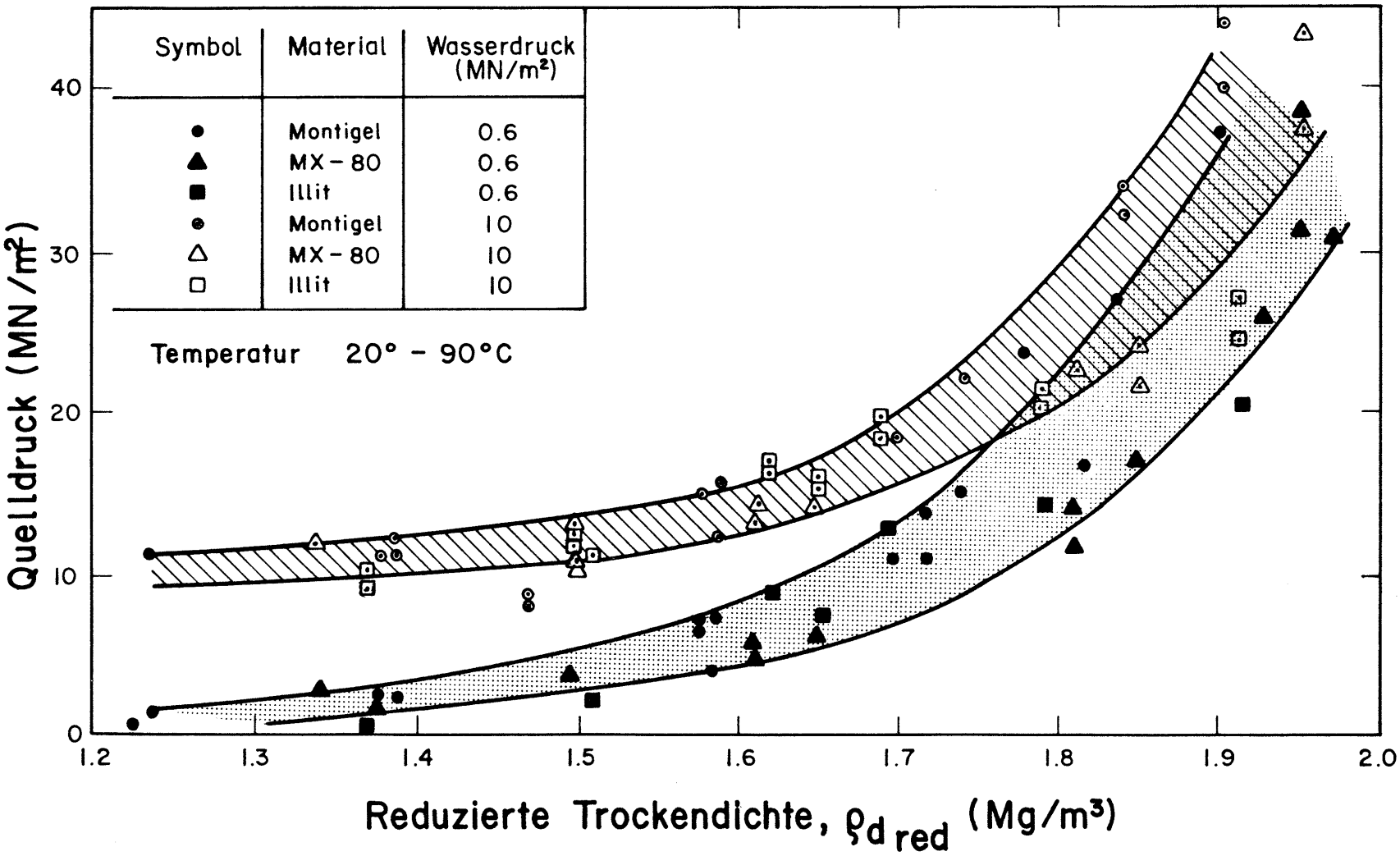


Fig. 7 Gemessene Quelldrücke in Abhängigkeit der reduzierten Trockendichte und des einwirkenden Wasserdruckes (Daten aus Bucher & Spiegel, 1984)

(6) **Einfluss der Zeit:** Bisherige Resultate aus Langzeitversuchen deuten darauf hin, dass der Quelldruck mit der Zeit leicht abnimmt. Diese Beobachtungen könnten aber auch auf Kriechvorgänge in der Messeinrichtung zurückzuführen sein. Kriechvorgänge können aber auch in eigentlichen Versiegelungsaufgaben auftreten, wenn im Fels in der unmittelbaren Kontaktzone mit dem Bentonit Diskontinuitäten vorhanden sind (aufgelockerte Zonen, Klüfte, Risse etc.)

(7) **Einfluss Versuchsablauf:** Für die beiden als Serie 1 + 2 definierten Versuchsabläufe wurden beim Montigel grössere Unterschiede bei Trockendichten unterhalb 1.7 Mg/m3 festgestellt. Beim MX-80 konnte dies nicht beobachtet werden.

2.2.7 Durchlässigkeit für Wasser

Versuche zur Messung der Durchlässigkeit (Permeabilität) von hochverdichtetem Bentonit wurden von Pusch (1980 c) an MX-80 und an Erbslöh Ca-Bentonit sowie von Bucher & Spiegel (1984) an MX-80 durchgeführt. (Der Erbslöh Bentonit hat einen Montmorillonitgehalt von etwa 70 % und enthält 20 - 60 mg Ca, 15 - 30 mg Mg und 20 - 40 mg Na pro Liter Porenwasser). Bei den schwedischen Versuchen wurde "Allard's Wasser", ein synthetisches Grundwasser, verwendet währenddem bei den schweizerischen Messungen entmineralisiertes Wasser und "Säckinger Wasser" gebraucht wurden. Westsik et al (1983) untersuchten die Durchlässigkeit von hochverdichtetem CS-50 Na-Bentonit und "Panther Creek" Ca-Bentonit. Dazu wurde je eine Grundwasserzusammensetzung, welche in Basaltformationen bzw. Tufformationen vorkommt, verwendet. Weitere Daten, jedoch mehr qualitativer Art und für geringere Dichten, wurden von Mesri & Olson (1971) geliefert.

Bei den Versuchen von Pusch (1980c) und Bucher & Spiegel (1984) wurde der Einfluss der Variablen Dichte, Temperatur und hydraulischer Gradient auf den Durchlässigkeitsbeiwert, k, untersucht. Die Messungen des Durchflusses erfolgten in der Schwelldruckapparatur nachdem die Proben gesättigt waren. Zur Bestimmung von k wurde das Gesetz von Darcy verwendet.

Die Resultate der Messungen von Pusch (1980 c), Bucher & Spiegel (1984), sowie von Mesri & Olson (1971) sind in Fig. 8 zusammengestellt (alle Werte wurden auf Feuchtdichte umgerechnet) und zeigen folgendes:

(1) Die Durchlässigkeit nimmt mit fallendem Gradienten ab. (Der in den Versuchen verwendete Gradient variierte zwischen etwa $3 \cdot 10^4$ und 10^3.) Der Variationsbereich von k, welcher durch den veränderlichen Gradienten beobachtet wurde, ist in Fig. 8 durch die horizontale Verbindung zweier gleicher Punkte ersichtlich. Pusch (1980) führte diese Ergebnisse darauf zurück, dass im hochverdichteten Bentonit die Wasserbewegung bei kleinem Gradienten dort stattfindet, wo der Teilchen- oder Lamellenabstand 10Å überschreitet. Bei hohen Gradienten besteht jedoch die Möglichkeit interlamellarer Wassermolekülbewegungen, welche infolge Verschiebung scherbeanspruchter benachbarter Lamellen hervorgerufen werden können.

(2) Die Durchlässigkeit nimmt mit zunehmender Temperatur zu. Eine Erhöhung der Temperatur von 20°C auf 70°C ergab eine Erhöhung des k-Wertes, um das Drei- bis Siebenfache. Allgemein empfiehlt Pusch (1980 c) eine Erhöhung um einen Faktor 5 bis 10 für beide Bentonitarten.

(3) Der Einfluss der Dichte auf die Permeabilität ist sehr ausgeprägt. Die Zunahme von k mit abnehmender Dichte geht aus dem Band für Namontmorillonit in Fig. 8 hervor, welches von Pusch aufgrund einer Literaturstudie 1977 konstruiert wurde. Die Bandbreite berücksichtigt die Variationen, die infolge Unterschieden in Versuchstechnik, Temperaturen, hydraulischen Gradienten und in der Zusammensetzung entstehen. Die Beziehungen von Mesri & Olson (1971) postulieren einen linearen Zusammenhang zwischen log k und dem Quadrat des Porenkanaldurchmessers. Nach Pusch (1980 c) sollen bei hochverdichteten Bentoniten der steigende Anteil des mineralgebundenen Wassers und die Tortuosität des Wasserflusses und die damit verbundene grössere Weglänge die wichtigsten Ursachen der verminderten Durchlässigkeit sein.

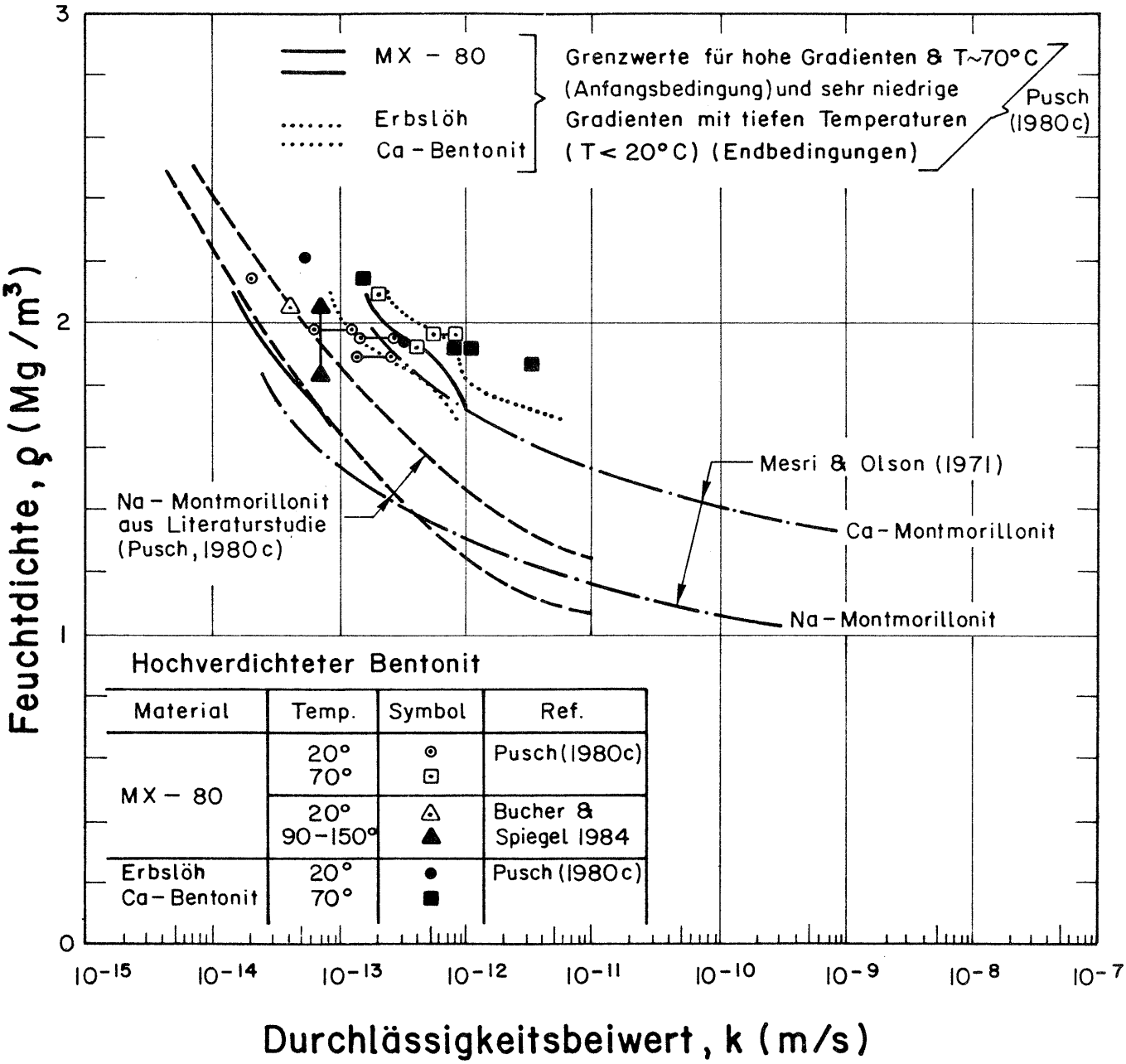


Fig. 8 Wasserdurchlässigkeit für Na- und Ca-Bentonit in Abhängigkeit der Feuchtdichte

(4) Der Einfluss der absorbierten Kationen ist nicht gross aber deutlich. Die Durchlässigkeit war beim Ca-Bentonit (Erbslöh) allgemein etwa 2 bis 5 mal höher. Pusch (1980 c) interpretiert diese Beobachtung dadurch, dass beim Ca-Bentonit bei der Wasseraufnahme infolge des etwas geringeren Quellvermögens nicht alle Poren sich mit Bentonitgel zu füllen vermögen. Das für den Durchfluss zur Verfügung stehende Porenvolumen bleibt daher etwas grösser (siehe auch Abschnitt 2.3.3).

Die Langzeit-Permeabiltät in einem Endlager ist sowohl durch niedere Gradienten wie auch durch tiefe Temperaturen gegeben und wird etwa der unteren Grenze der in Fig. 8 eingezeichneten Bereiche (Endbedingungen) entsprechen. Bei einer Feuchtdichte von 1.85 Mg/m3 (was bei 9 % Wassergehalt einer Trockendichte von 1.7 Mg/m3 entspricht) wäre nach Fig. 8 die Permeabilität bei MX-80 etwa $4 \cdot 10^{-14}$ m/s und für Ca-Bentonit etwa $3 \cdot 10^{-13}$ m/s.

Die von Westsik et al (1983) gefundenen Werte waren von der gleichen Grössenordnung. Die verwendeten Na- und Ca-Bentonite hatten einen Wassergehalt von 5 bzw. 13 %. Auf Trockendichten umgerechnet ergeben sich dann für die beiden Bentonitarten praktisch keine Unterschiede in den Permeabilitäten. Zum Beispiel für eine Trockendichte von 1.7 Mg/m3 betrug der Durchlässigkeitsbeiwert k etwa $3 \cdot 10^{-14}$ m/s.

2.2.8 Durchlässigkeit für Gase

Gastransport durch gesättigten, verdichteten Bentonit bedingt eine Verdrängung des "freien" Wassers in den grösseren Poren oder, bei sehr dichter Lagerung, eine Verschiebung der Tonpartikel Aggregate. Im letzteren Fall besteht eine Beziehung zum Quelldruck. Pusch et al (1985 b) zeigten experimentell, dass ein kritischer Gasdruck existiert, bei welchem eine plötzliche starke Zunahme des Gasflusses durch den Bentonit beobachtbar ist. Der kritische Gasdruck steigt mit zunehmender Dichte und stellt einen spezifischen Materialkenntwert dar.

Pusch et al (1985 b) führten ihre Versuche mit MX-80 Bentonit im Schwelldruckoedometer an Proben von 50 mm Durchmesser und 20 mm Höhe

durch. Die Feuchtdichte der Proben variierte zwischen 1.70 und 2.14 Mg/m3. Vor Beginn der Gasdurchlässigkeitsversuche mit Stickstoff oder Wasserstoff wurden die Proben in der Schwelldruckapparatur gesättigt, wobei das Erreichen der Sättigung durch konstanten Quelldruck angezeigt wurde. Zur Sättigung wurde das ziemlich salzhaltige Säckingerwasser der NAGRA verwendet.

Der gemessene kritische Gasdruck variierte zwischen 1.6 und 21 MN/m2. Das Verhältnis kritischer Gasdruck zu Quelldruck nahm Werte zwischen 0.2 und 0.9 an mit typischen Werten um etwa 0.5 - 0.7. Das Verhältnis war um so kleiner je rascher der angewandte Gasdruck anstieg. Die gelverdrängende Wirkung des durch eine Probe fliessenden Gases konnte auch im Polarisationsmikroskop beobachtet werden.

Makroskopisch scheint die Durchlässigkeit für Gase im gleichen Grössenbereich zu liegen wie für Wasser, d. h. also etwa um 10^{-13} m/s für Trockendichten von 1.7 - 1.8 Mg/m3.

2.2.9 Extrusionsfähigkeit

Hohlräume, wie z. B. Bohrlöcher, die mit Bentonit versiegelt werden, sind oft mit Kluftsystemen durchzogen. Die Anzahl der Risse und Spalten (Häufigkeit) sowie die statistische Verteilung der Weiten der Kluftöffnungen, hängen stark von der Gesteinsart und der tektonischen Vorgeschichte des Gebirges ab. Klüfte können offen, geschlossen, oder mit einem sekundären Material gefüllt sein.

Beim Quellen eines Bentonitpfropfens in einem Bohrloch infolge Wasseraufnahme wird das Bentonitgel auch teilweise in die offenen Spalten einwandern. Dieser Vorgang wird hier als Extrusion bezeichnet. Die Eindringtiefe hängt von der Anfangsdichte der Bentonite und der Spaltenbreite ab. Die treibende Kraft ist die Wasseraufnahmefähigkeit des Bentonits. Damit die Migration des Gels in die Spalte aufrecht erhalten wird, muss der Wasserzufluss gesichert sein, d. h. ein ausreichender hydraulischer Gradient und Permeabilität im Fels muss vorhanden sein. An der Front ist der eindringende Bentonit dem hohen Wasserge-

halt entsprechend sehr weich. Es darf angenommen werden, dass die Rauheit der Spaltenflächen auf das Eindringen einen hemmenden Einfluss hat.

Pusch (1983 d) hat die Extrusionsfähigkeit von MX-80 sowohl theoretisch wie auch experimentell untersucht. Der Extrusionsvorgang wurde als viskoser Fliessprozess mit linear abnehmender Dichte in der Extrusionsstrecke modelliert. Die Extrusionslänge kann dann mit einer in der Zeit logarithmisch variierenden Beziehung beschrieben werden. Bei einer durchschnittlichen Feuchtdichte von 1.75 t/m3 erhält man z. B. für 100'000 Jahre Extrusionslängen von 2.5 mm bis 25 cm wenn die Spaltweite von 0.1 mm bis 1.0 mm variert. Bei erhöhten Temperaturen können sich diese Beträge infolge grösserer Viskosität des Bentonits bei kleinen Spaltbreiten um ein Mehrfaches erhöhen. Andererseits zeigten aber die experimentellen Untersuchungen, dass für Spalten grösser als etwa 0.1 mm die Extrusionslängen bedeutend höher waren als dies vom theoretischen Modell vorausgesagt wurde. Es wird daher angenommen, dass mit hochverdichtetem Bentonit durch Extrusion in Spalten $\geq$ 0.1 mm in den ersten 10 cm mindestens eine Dichte von 1.5 t/m3 erwartet werden darf.

2.2.10 Erosionsbeständigkeit

Bei mit reinem Bentonit versiegelten Bohrlöchern besteht die Gefahr der Oberflächenerosion durch vorbeifliessendes Wasser. Dies gilt besonders für Stellen, wo die Dichte des Bentonits infolge Quellen und Extrusion reduziert wurde. Mechanistisch betrachtet hängt das Erosionspotential vom Verhältnis der durch die Strömung verursachten Schleppkräfte und den zwischen den Tonpartikeln wirkenden Bindungskräften ab. Die Schleppkräfte hängen von der Grösse und Form der Tonpartikel, der Viskosität des Wassers und der Fliessgeschwindigkeit ab, währenddem die Bindungskräfte u. a. durch die Struktur sowie die Ionenart und Konzentration bestimmt sind (Pusch, 1983 d). Die relative Grösse der Partikelbindungskräfte kann aus Viskometerversuchen abgeschätzt werden.

So zeigt sich z. B., dass Ca-Bentonite leichter erodierbar sind als Na-Bentonite, da die Mikrostruktur von Ca-Bentonit aus eher schwach verketteten Aggregaten (Domänen) besteht mit relativ grossen Poren dazwischen (siehe Abschnitt 2.3.3).

Nach theoretischen Ueberlegungen von Pusch (1983 d), d. h. durch Vergleich von Schleppkräften und vorhandenen Bindungskräften soll für Fliessgeschwindigkeiten von weniger als 10^{-4} m/s in den Felsklüften die Erosionsgefahr für den Bentonit sehr gering bleiben. Doch sind weitere Abklärungen notwendig, um solche Schwellenwerte mit grösserer Zuverlässigkeit festlegen zu können.

2.3 Mineralogische und chemische Untersuchungen

2.3.1 Mineralstruktur von Montmorillonit

Bentonite sind Mineralgemische, die als Hauptbestandteil das Tonmineral Montmorillonit enthalten. Dieses Mineral gehört zur Smektit-Gruppe und ist wie die meisten Tonmineralien ein Schichtgitteralumosilikat, welches als Bausteine SiO_4 Tetraeder (mit Silizium im Zentrum und Sauerstoff in den Ecken) und Oktaeder (mit Aluminium im Zentrum und Sauerstoff oder Hydroxylgruppen an den Ecken) enthält (Fig. 9a). Die Tetraeder wie auch die Oktaeder bilden durchgehende Schichten. Im Modell der Fig. 9b zeigen alle Spitzen der Tetraeder in die gleiche Richtung und bilden in der Schichtebene ein Netz von 6-eckförmigen Ringen, wobei in jedem Tetraeder drei Sauerstoffatome von den benachbarten Siliziumatomen gemeinsam beansprucht werden. Die Oktaeder berühren sich entlang der schrägstehenden Kanten und bilden in der Schichtebene ein Netz von 6-eckförmigen Ringen (sog. dioktaedrische Minerale, bei welchen nur 2/3 aller möglichen Oktaeder-Positionen besetzt sind). Bei anderen Smektiten hat sich ein lückenloses Netz gebildet (sog. trioktaedrische Minerale, bei welchen alle möglichen Oktaeder-Positionen gefüllt sind).

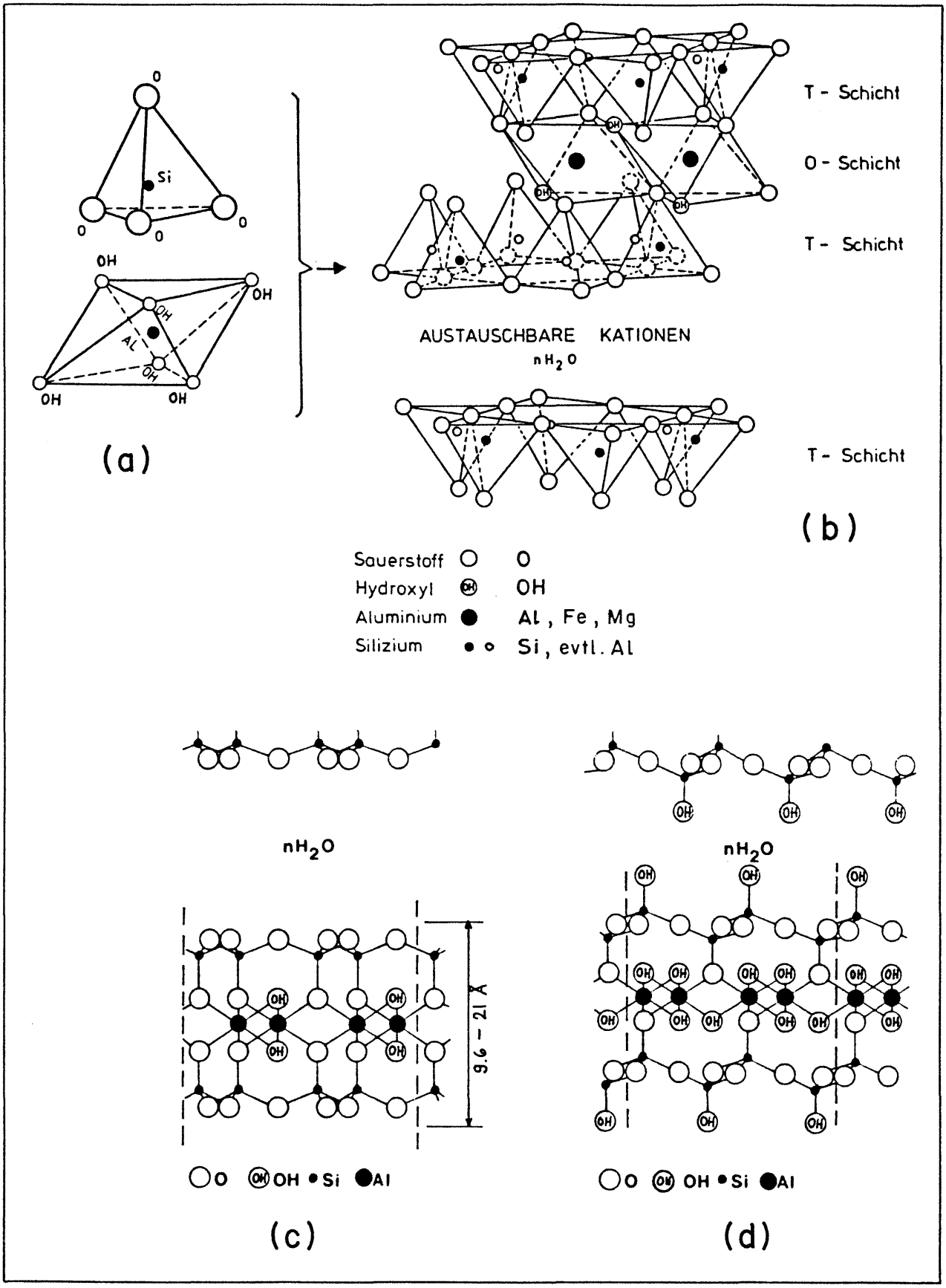


Fig. 9 (a) Gitterbausteine SiO_4^{-2} Tetraeder und Al $(OH)_6^{-3}$ Oktaeder, (b) & (c) Elementarstruktur von Montmorillonit (Smektit) nach Hofmann, Endell & Wilm, (d) Struktur nach Edelman & Favejee (Grim, 1968; Pusch, 1983b)

Beim Montmorillonit bilden zwei Tetraederschichten mit einer Oktaederschicht dazwischen das Elementargitter. Dabei sind die Spitzen der Tetraeder mit den Sauerstoffatomen gegen die Oktaederschicht gerichtet und bilden mit der Hydroxylgruppe der Oktaeder eine gemeinsame Ebene. Die gemeinsamen Atome, also die Verbundstellen, werden dabei zu O anstatt OH. Bei aufeinanderliegenden Tetraeder-Oktaeder-Tetraeder Elementargittern grenzt die Sauerstoffschicht des einen Gitters an dasjenige des benachbarten. Die Bindungskräfte zwischen den Elementargittern sind daher schwach und polare Moleküle, wie Wasser, können sich mit Leichtigkeit zwischen den Schichten einlagern und diese auseinanderdrücken. Dies ist eine der Hauptcharakteristiken des Montmorillonites.

Im allgemeinen wurden zwei mögliche Formen für das Montmorillonit Elementargitter vorgeschlagen, nämlich die ursprüngliche, von Hoffmann et al (1933) postulierte Version (Fig. 9 a + b) und das von Edelman & Favejee (1940) erarbeitete Modell (Fig. 9 c). Beim letzteren zeigen die Tetraederspitzen beider Aussenschichten abwechslungsweise nach innen und nach aussen. Diejenigen, welche nach aussen zeigen, haben an ihrer Spitze O durch OH ersetzt. Auch befinden sich nicht mehr alle Si-Atome in einer Ebene. Pusch (1983b) glaubt, dass das Edelman-Favejee-Modell zwischen 0 und 100°C das Verhalten von Montmorillonit besser zu erklären vermag. Dies gilt insbesondere für die Ionenaustauschkapazität und das pH Buffervermögen.

Die theoretische Formel des Hofmann et al Modelles ist $(OH)_4\ Si_8\ Al_4\ O_{20} \cdot n\ H_2O$, doch weicht in Wirklichkeit die Zusammensetzung des Montmorillonites immer von dieser Formel ab. Der Grund liegt in der Substitution von Ionen im Schichtgitter (isomorpher Ersatz). In der Tetraederschicht kann Si^{4+} teilweise durch Al^{3+} ersetzt werden und in der Oktaederschicht Al^{3+} durch Mg^{2+}, Fe^{3+}, Fe^{2+}, Cr^{3+}, Zu^{2+}. Da die Ladung der sich ersetzenden Ionen meistens verschieden ist, kommt es zu einem negativen Ladungsüberschuss im Kristallgitter, obwohl sich die Ladungsunterschiede der sich substituierenden Ionen teilweise kompensieren. Interessanterweise wurde beobachtet, dass unabhängig von den Substitutionen die im Schichtgitter stattgefunden haben, die negative Nettoladung immer etwa 0.6 - 0.7 per Elementarzelle beträgt (Grim, 1968).

Die negative Nettoladung wird durch Kationen kompensiert, welche sich im Schichtgitter einlagern, monovalente Ionen (z.B. Na) sitzen vorzugsweise in den hexagonalen Lücken, währenddem die divalenten Kationen (z. B. Ca) sich möglichst eine Lücke in der Nähe einer negativen Ladung einen Platz suchen.

Unter Berücksichtigung der Ionensubstitutionen kann die Formel von Montmorillonit wie folgt geschrieben werden:

$$(OH)_4(Si_{8-a}\ X_a)\ (Al_{4-b},\ Y1_p,\ Y2_q,\ Y3_r,\ \ldots)\ O_{20}\ n\ H_2O$$

wobei $p + q + r + \ldots = b$ und X ist das substituierende Ion in der Tetraederschicht (i.a. Al^{3+}). Y1, Y2, Y3, ... sind substituierende Ionen in der Oktaederschicht, d. h. vor allem Mg^{2+}, aber auch Fe^{2+}, Fe^{3+}, etc.

Müller-Vonmoos & Kahr (1983) berechneten aufgrund von Experimenten folgende Mineralformeln für MX-80 und Montigel:

MX-80: $(OH)_4\ Si_{7.92}\ Al_{0.08})(Al_{3.10}\ Fe^{3+}_{0.40}\ Fe^{2+}_{0.02}\ Mg_{0.48})\ O_{20}$ $\downarrow$ $Na_{0.60}$

Montigel: $(OH)_4\ Si_{8.0}\ (Al_{2.72}\ Fe^{3+}_{0.62}\ Fe^{2+}_{0.02}\ Mg_{0.70})\ O_{20}$ $\downarrow$ $Ca,\ Mg_{0.56}$

Die Zwischenschichtladungen pro $O_{10}\ (OH)_2$-Einheit (halbe Elementarzelle) betragen demnach für MX-80 und Montigel 0.30 bzw. 0.28 Ladungen.

Die theoretische Formel für das Edelman-Favejee Modell lautet:

$$(OH)_{12}\ Si_8\ Al_4\ O_{16} \cdot H_2O\ \text{(interlayer)}$$

Bei diesen Gitterstrukturen ist kein isomorpher Ersatz notwendig um die Austauschkapazität zu erklären, da die Anlagerung von Kationen an die OH Spitzen der Tetraeder erfolgen kann, indem das H der OH-Gruppe

durch ein austauschbares Kation ersetzt wird. Gewisse chemische Vorgänge sind deshalb mit diesem Modell besser zu verstehen, doch ist bis jetzt eine röntgenograhische Bestätigung anscheinend nicht gefunden worden. So wird auch heute von den Tonmineralogen eher die Struktur von Hofmann et al akzeptiert.

Röntgenograhische Untersuchungen an MX-80 und Montigel (Müller-Vonmoos & Kahr, 1982) ergaben einen Basisabstand von 12.3 Å beim Na-Montmorillonit des MX-80, entsprechend einer einzigen Wasserschicht im Zwischenschichtraum, und einen Basisabstand von 15.2 Å beim Ca-Montmorillonit des Montigels entsprechend etwa zwei Wasserschichten.

2.3.2 Chemische Daten von MX-80 und Montigel

2.3.2.1 Kationenaustauschkapazität und austauschbare Kationen

Kationen, welche sich im Zwischenschichtraum (d. h. zwischen benachbarten Tetraederschichten) befinden, sind nicht an das Kristallgitter gebunden und können gegen andere Ionen ausgetauscht werden. Die Austauschbarkeit hängt dabei vor allem von der Valenz des Ions, seiner Grösse und seiner relativen Konzentration ab. Kleine Kationen haben die Tendenz, grössere zu verdrängen. Eine typische Selektivitätsreihenfolge lautet z. B. $Na^+ < K^+ < Mg^{2+} < Ca^{2+}$. Die Kationenaustauschkapazität ist auch pH-abhängig (Weiss, 1958).

Für MX-80 und Montigel wurden die in Tabelle V gegebenen Werte für die Ionenaustauschkapazität ermittelt (Müller-Vonmoos & Kahr, 1982, 1983):

Tabelle V: Kationenaustauschkapazität und austauschbare Kationen von MX-80 und von Montigel. (Ergebnisse in Milliäquivalent pro 100 g ofentrockenes Material.)

Material	Kationenaustauschkapazität mäq/100 g	austauschbare Kationen								
		Na^+ mäq/100g	%	K^+ mäq/100g	%	Mg^{2+} mäq/100g	%	Ca^{2+} mäq/100g	%	Summe mäq/100g
MX-80	75.5 77.2 <u>76.4</u>	62.4	85.5	0.2	0.3	3.0	4.1	7.4	10.1	73.0
Montigel	62.6 61.3 <u>62.0</u>	1.8	2.9	0.2	0.3	22.4	36.1	37.6	60.6	62.0
Montigel K	63.2 62.2 <u>62.7</u>	1.0	1.6	0.4	0.7	22.8	37.4	36.8	60.3	61.0

Auf den Montmorillonitgehalt umgerechnet, ergeben sich Austauschkapazitäten von 102 mäq/100 g Montmorillonit bei MX-80 und 94 & 92 mäq/100 g Montmorillonit bei Montigel resp. Montigel K. Beim MX-80 sind 86 % der austauschbaren Ionen Na^+, während dem beim Montigel 61 % der austauschbaren Ionen Ca^{2+} und 36 % Mg^{2+} betreffen.

2.3.2.2 <u>Mineralogische Zusammensetzung</u>

Müller-Vonmoos & Kahr (1983) ermittelten die in Tabelle VI wiedergegebene Zusammensetzung:

Tabelle VI: Mineralogische Zusammensetzung der Bentonite MX-80 und Montigel in Prozent der ofentrockenen Proben

Mineral	MX-80 %	Montigel %
Montmorillonit	75	66
Quarz	15.2	8.3
Glimmer	<1	12 - 15
Feldspäte	5 - 8	2 - 4
Carbonate	1.4	3.8
Kaolinit	<1	2
Pyrit (FeS_2)	0.3	0
übrige Mineralien	2	2 - 3
organischer Kohlenstoff	0.4	0.03

Der Anteil der Fraktion < 0.002 mm in den Bentoniten beträgt sowohl für MX-80 wie auch für Montigel 75 - 80 % (siehe auch Fig. 1). Pusch (1983 b) gibt für MX-80 etwas höhere Werte an, d. h. 85 - 90 %.

Der verbleibende Anteil im Bentonit wird hauptsächlich durch Quarz, bei Montigel auch durch Feldspäte eingenommen, die sowohl in Siltpartikel- wie auch Tonpartikelgrössen auftreten.

Tabelle VII: Chemische Analyse der Fraktion <0.2µm und Kaliumgehalt der unfraktionierten Bentonite MX-80 und Montigel. Ergebnisse in Gewichtsprozenten der bei 105°C getrockneten Probe (Müller-Vonmoos & Kahr, 1983).

Probe		SiO_2 %	Al_2O_3 %	Fe_2O_3 %	FeO %	MgO %	CaO %	Na_2O %	K_2O %	MnO %	TiO_2 %
MX-80	<0.2µm	59.82 60.69	19.58 19.63	3.61 3.88	0.14 0.12	2.40 2.35	1.85 1.81	0.03 0.02	0.10 0.09	0.002 Spur.	Spur. Spur.
	Ø	60.25	19.61	3.75	0.13	2.38	1.83	0.03	0.10	0.001	Spur.
MX-80	Ø								0.60		
Montigel	<0.2µm	59.27 57.42	18.75 18.28	5.56 5.45	0.18 0.16	3.11 3.13	1.87 1.87	0.08 0.05	0.69 0.77	0.02 0.02	Spur. Spur.
	Ø	58.35	18.52	5.51	0.17	3.12	1.87	0.07	0.73	0.02	Spur.
Montigel	Ø								1.62		

Ø = Mittelwert

Bentonite anderer Herkunft haben sehr ähnliche Zusammensetzungen (siehe z. B. Tabelle A 1-3 in Studer et al, 1984).

2.3.2.3 Oberfläche

Die Oberfläche der Bentonite wurden von Müller-Vonmoos & Kahr (1983) aus dem Gewicht und der Oberfläche der Elementarzelle und dem Gehalt an Montmorillonit ermittelt. Das Gewicht der Elementarzelle ist das Doppelte des Molgewichtes. Letzteres wurde für MX-80 mit 372.60 g und für Montigel mit 375.04 g berechnet. Die spezifische Oberfläche ergibt sich dann zu:

562 m2/g für MX-80
493 m2/g für Montigel

Die Montmorillonitoberflächen betragen rund 750 m2/g.

2.3.3 Mikrostruktur

Für die Mikrostruktur von Bentonit spielen die Dichte und der Sättigungsgrad eine wesentliche Rolle. Bei normalen Dichten, d. h. Bentoniten in Gelform, wird die strukturelle Anordnung der Partikel vor allem durch den Salzgehalt des Porenwassers bestimmt. Für diesen Fall gilt die sog. Doppelschicht Theorie (oder das DLVO Modell), welche auf der elektrostatischen Abstossung von Ionenschichten, die die Partikel umgeben, und der Anziehung durch van der Waals-Kräfte, beruht. Eine höhere Salzkonzentration bedingt eine Annäherung der Mineralnetzflächen, was zu einer Aggregation und Berührung der Tonplättchen führt. In stark salzhaltigem Wasser sind die Tonplättchen in den Aggregaten mehr oder weniger parallel angeordnet und dicht beisammen. Zwischen den Aggregaten befinden sich relativ grosse Poren. Bei geringem Salzgehalt sind die Aggregate weniger dicht, dafür sind die Poren dazwischen kleiner. Nun zeigt aber das Gel des Na-Montmorillonites infolge seiner starken Wasseradsorptionsfähigkeit keine Zusammenballungen und die Plättchen bleiben disperse-aggregationsfrei (Fig. 10a). Dies erklärt die geringere hydraulische Durchlässigkeit des Na-Montmorillonites gegenüber anderen Tonen auch im Gelzustand. Ersetzt man aber die Na-Ionen durch Ca-Ionen, d. h. zweiwertige Kationen, so verringert sich das Potential der Doppelschicht und es bilden sich Aggregate aus parallelen Tonplättchen (Fig. 10b) sog. Domänen. Zwischen diesen Domänen bilden sich relativ grosse Poren (Pusch et al, 1985 a).

Beim lufttrockenen Montmorillonit beträgt der Wassergehalt etwa 10 %. Die Granulatkörner, zu welchen der Bentonit verarbeitet wurde, bestehen aus Aggregaten von dichtgepackten, subparallel angeordneten und verbogenen Tonplättchen, die bis zur Grösse der Siltfraktion reichen können (Fig. 11a). In den Aggregaten können sich auch andere Mineralien wie Quarz und Feldspäte eingebettet haben. Beim Verdichten entsteht ein Medium mit stark anisotropen, sich berührenden Aggregaten. Der Abstand zwischen den Tonplättchen ist äusserst klein (10 - 20 Å)

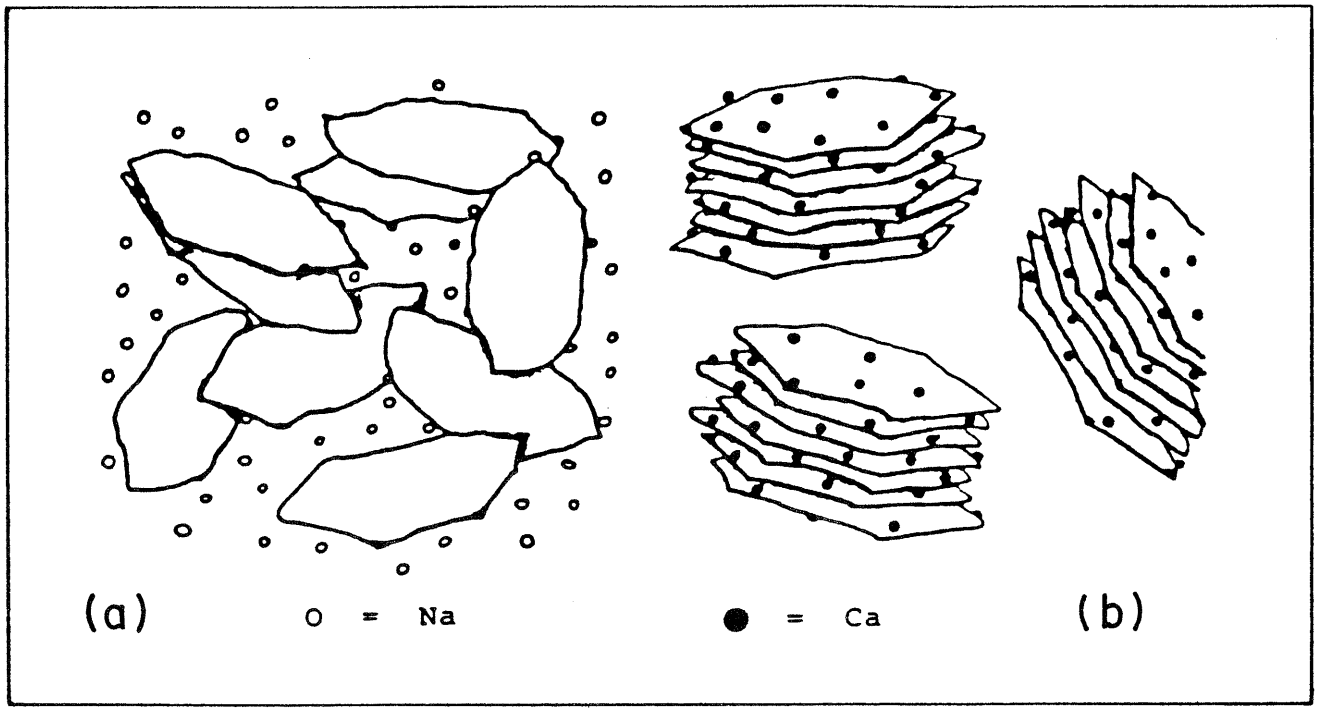


Fig. 10 Mikrostruktur von (a) Na-Montmorillonit: dispers und aggregationsfrei, und (b) Ca-Montmorillonit: Domänen mit aggregierten parallelen Tonplättchen (Pusch, 1983d)

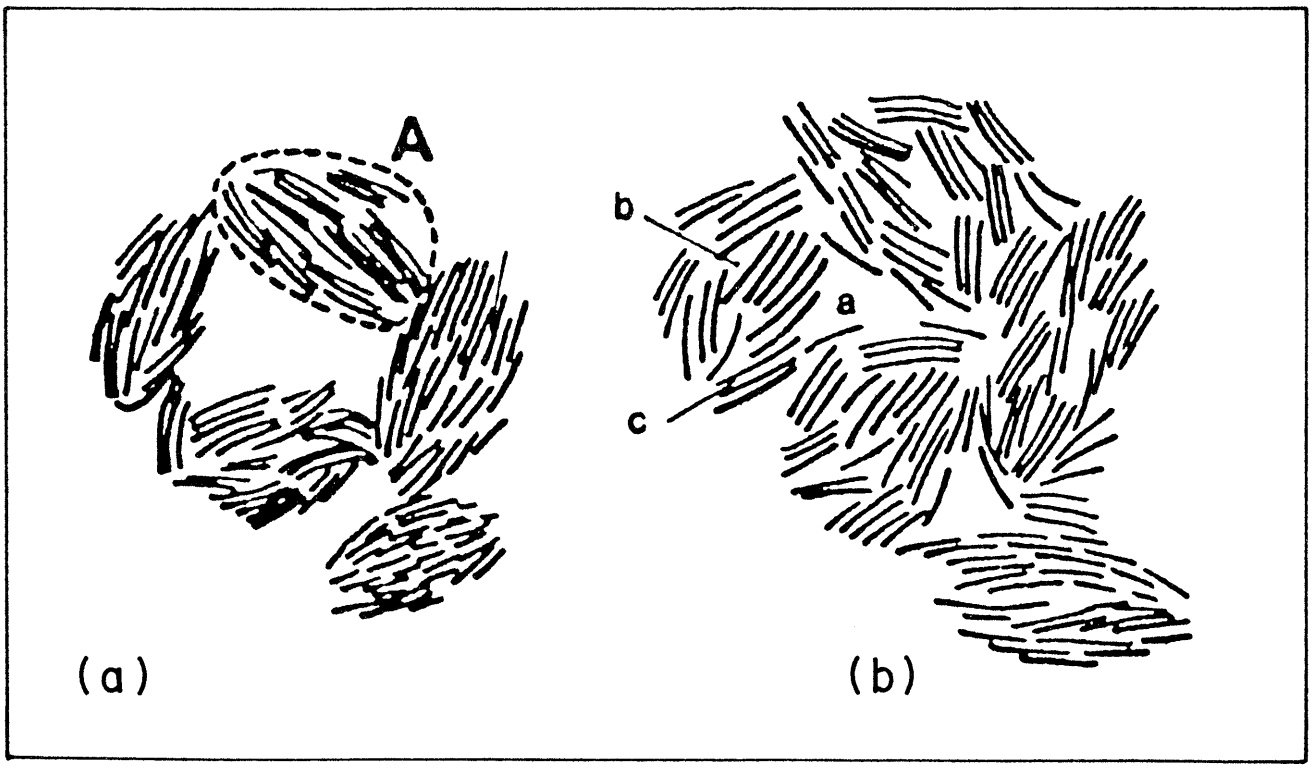


Fig. 11 (a) Mikrostruktur von lufttrockenem, hochverdichtetem Bentonit: sich berührende Aggregate mit Interaggregatpore, (b) Homogenisierung durch Quellen (Pusch, 1983d)

(Fig. 11a). Zwischen den Aggregaten können aber auch nach der Verdichtung noch grösserer Poren bestehen bleiben. Durch Wasseraufnahme werden aber dann diese Poren durch das quellende Bentonitgel ausgefüllt. Dadurch entsteht eine Homogenisierung und Isotropisierung der Struktur hinsichtlich Partikel-Abstand und Orientierung (Fig. 11b).

2.3.4 Wasseraufnahme

In diesem Abschnitt wird der Mechanismus der Wasseraufnahme behandelt. Die makrophysikalischen Vorgänge und deren mechanische Auswirkungen wurden im Abschnitt über den Quelldruck zusammengefasst.

Im lufttrockenen Zustand hat der verdichtete Bentonit (Trockendichte ≈ 1.7 Mp/m3) etwa einem Wassergehalt von 10 % oder einen Sättigungsgrad von 60 %. Dies entspricht etwa einer einmolekularen Wasserschicht zwischen benachbarten Sauerstoffebenen der Tetraederschichten (Pusch 1983 b). Nach Van Olphen (1975) wird zur Ausbildung einer monomolekularen Wasserschicht etwa 0.1 g Wasser pro Gramm Montmorillonit benötigt.

Die Aufnahme des Wassers erfolgt stufenweise. Dies haben röntgenographische Messungen der Schichtabstände und Auswertungen von Adsorptionsisothermenmessungen bestätigt (Kahr et al, 1986). Die treibende Kraft ist zuerst die Hydratationsenergie der eingelagerten Kationen, wie auch einiger Mineralschichtflächen (Pusch, 1982, Pusch & Carlsson, 1985). Diese Phase wird als innerkristalline Quellung bezeichnet. Die Einlagerung der ersten Wasserschicht erfolgt bis zu einem Wassergehalt von etwa 10 % (bezogen auf reinen, trockenen Montmorillonit) und führt zu einer Schichtaufweitung von 2.5 - 3 Å (d.h. von 9.6 Å beim Montmorillonit ohne Zwischenschicht-Wassermoleküle auf 12.4 Å mit einer monomolekularen Wasserschicht, siehe Fig. 12). Nach einer Modellvorstellung von Schön (Kahr et al, 1986) sind bei einer monomolekularen Wasserschicht die Wassermoleküle planar um die Kationen angeordnet, welche aus ihren vorherigen Positionen in den hexagonalen Oeffnungen der Tetraederschicht herausgehoben worden sind und sich jetzt auf der Mittelebene zwischen den Tetraederschichten angeordnet haben. Dabei kommen auf ein Na^+-Ion sechs H_2O-Moleküle und auf ein Ca^{2+}-Ion zwölf H_2O-Moleküle. Bei Ansteigen des Wassergehaltes auf etwa 20 % sind zwei

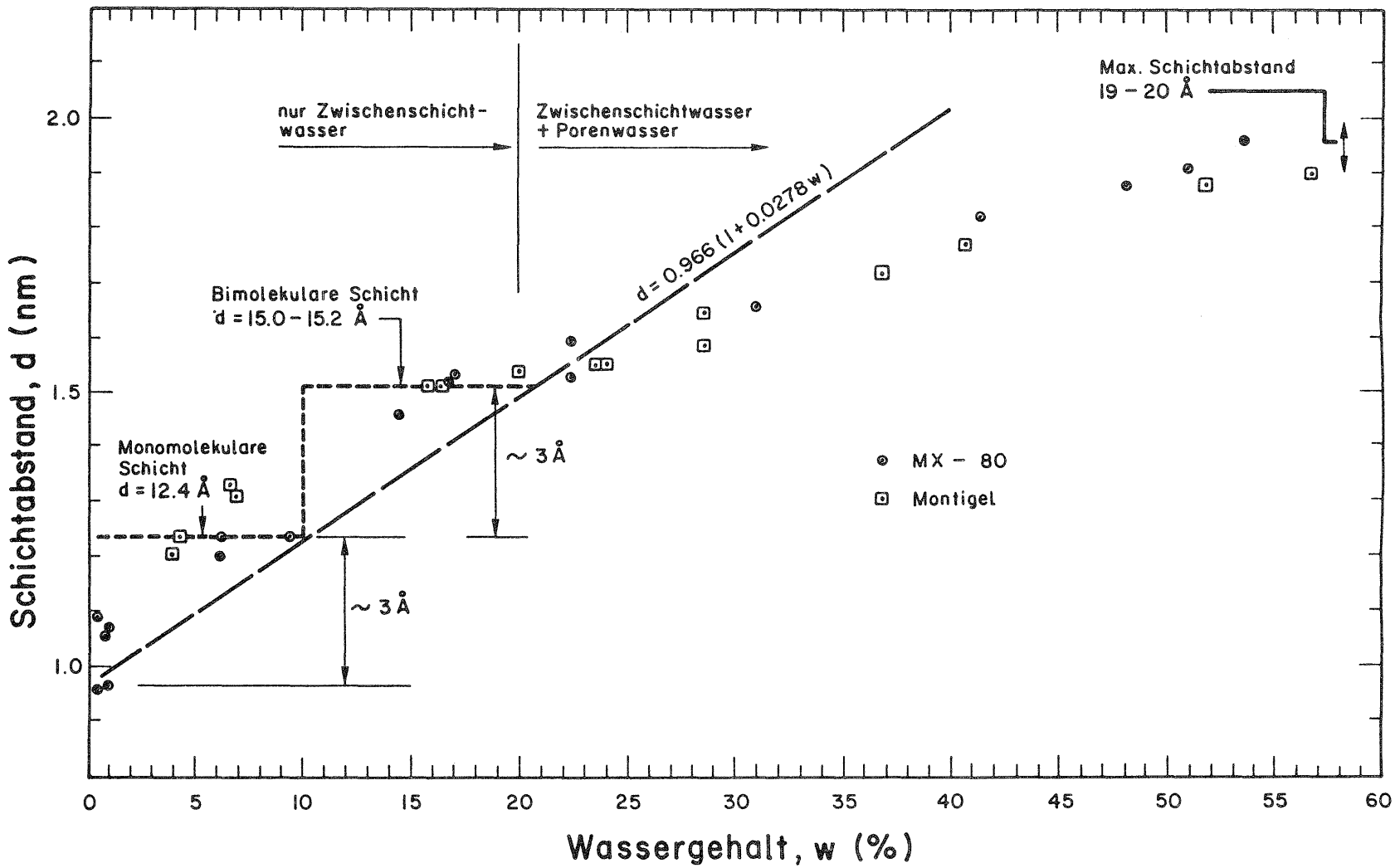


Fig. 12 Schichtabstand von MX-80 und Montigel in Abhängigkeit des Wassergehaltes (Daten aus Kahr et al, 1986)

vollständige Wasserschichten (bimolekulare Schicht) im Zwischenschichtraum um die Kationen eingelagert (12 H_2O-Moleküle pro Kation beim MX-80 und 24 H_2O-Moleküle beim Montigel). Der Schichtabstand wird dabei wiederum um etwa 2.5 - 3 Å vergrössert, d. h. von 12.4 Å auf 15.0 - 15.2 Å. Damit ist die Hydration der Zwischenschichtgegenionen weitgehend abgeschlossen.

Bei weiterer Wasseraufnahme wird der Raum zwischen den hydratisierten Kationen und möglicherweise auch die feinsten Mikroporen um die Teilchen gefüllt. Bei den höher geladenen Ionen (Ca^{2+}, etc) können maximal vier Wasserschichten im Zwischenraum eingelagert werden. Der Schichtabstand bleibt dann auf 19 - 20 Å begrenzt, d. h. die Schichtaufweitung beim Ca-Montmorillonit infolge innerkristallinem Quellen beträgt maximal etwa 10 Å.

Bei Aufnahme zusätzlichen Wassers ist die treibende Kraft der osmotische Druck, welcher infolge des Konzentrationsunterschiedes der Ionen im freien Wasser und den in der Zwischenschicht fixierten Ionen entsteht. Diese Phase wird als osmotische Quellung bezeichnet. Sie ist umso stärker je geringer die Elektrolytkonzentration im Porenwasser, je kleiner die Wertigkeit und je kleiner der Radius der Gegenionen ist.

Bei freiem Quellen zerfällt der Na-Montmorillonit vollständig in eine kolloide Dispersion von Tonplättchen (Fig. 10a) währenddem der Zerfall beim Ca-Montmorillonit begrenzt ist. Ca-Smektite haben deshalb nur eine begrenzte Quellfähigkeit.

Andererseits baut sich bei verhinderter Volumenvergrösserung ein Quelldruck auf. Bei hohen Quelldrücken ist der Wassergehalt des Bentonits noch klein, z. B. 20 - 30 %. Dies entspricht 2 bis 3 Wassermoleküllagen in der Zwischenschicht und man befindet sich noch in der innerkristallinen Phase der Quellung. Die dabei sich entwickelnde Expansion der Schichten bewirkt eine erhebliche Reduktion des ursprünglichen Porenraumes. Der Beitrag der osmotischen Quellung ist daher für hochverdichteten Bentonit mit beschränkter Volumenvergrösserung, d. h. bis zu Enddichten von etwa 1.8 Mg/m3 von untergeordneter Bedeutung.

Hieraus folgt auch, dass die Salinität des Grundwassers auf den Quelldruck nur einen geringen Einfluss haben kann, da die Ionenkonzentration nur die osmotische Komponente des Quelldruckes stark beeinträchtigt. Dies wurde auch in den Parallelversuchen des IGB mit entmineralisiertem Wasser und sog. "Säckinger" Wasser bestätigt (siehe Abschnitt 2.2.6).

Sposito & Prost (1982), Kahr et al (1986) und andere Autoren haben gezeigt, dass das Zwischenschichtwasser, vor allem in der ersten Schicht, einen hohen Ordnungsgrad besitzt, welcher mit demjenigen von Eis vergleichbar ist. Schon Pusch (1980 a, 1982) postulierte, dass eine oder mehrere Wasserschichten an der Oberfläche der Tetraederschichten fixiert seien, d. h. ein quasi-kristallines Verhalten zeigen. Solange aber die Quellung nur innerkristallin ist, spielt die Art der Kationen eine untergeordnete Rolle (wie auch Fig. 12 bestätigt). Nach Pusch (1980 a, 1982) führen diese Ionen nur zu lokalen Verschiebungen in der Anordnung der Moleküle damit sie in die Gitterlücken passen. Daraus folgt, dass der Quelldruck beim hochverdichteten MX-80 und Montigel von gleicher Grössenordnung sein muss.

Infolge der quasi-kristallinen Anordnung der Zwischenwasserschichten ist die Beweglichkeit der Wassermoleküle stark eingeschränkt. Dies haben auch Diffusionsmessungen von Kahr et al (1986) gezeigt. Aus Wasseraufnahmemessungen in Abhängigkeit der Zeit wurde ein Diffusionskoeffizient von etwa $3 \cdot 10^{-10}$ m2/s ermittelt.

Kahr et al (1986) berechneten aus den Adsorptionsisothermen auch den Quelldruck. Die Resultate erwiesen sich als gute Annäherung an die von Bucher & Spiegel (1984) gemessenen Werte, speziell im Wassergehaltsbereich 10 - 25 % (siehe auch Fig. 13).

2.3.5 Langzeitstabilität

Faktoren, welche die Langzeitstabilität von Smektiten beeinflussen können, sind vor allem die folgenden:

- Temperatur
- Druck

- Konzentration der Alkali- und Erdalkalionen sowie der Kieselsäure im Kontaktwasser
- pH-Wert
- Wassergehalt des Bentonits

Die möglichen unerwünschten Folgen vom Gesichtspunkt der Endlagerung, welche bei Stabilitätsverlust eintreten können, sind eine Verminderung der Kationenaustauschkapazität und eine Verminderung des Quellvermögens. Dadurch würde sich nämlich die Durchlässigkeit des Bentonites erhöhen.

Chemische Prozesse, welche Umwandlungen bewirken, sind (Grauer, 1986):

- Phasenumwandlungen und Kristallgitterstrukturänderungen
- Illitisierung des Montmorillonites (infolge Erhöhung der Zwischenschichtladung)
- Einlagerung von Aluminiumhydroxidschichten

In der Natur kommen jedoch Bentonite vor, die sehr alt sind. Oft sind diese aber in Metabentonite umgewandelt worden. Als Beispiel diene der Metabentonit von Kinnekulle, Schweden, welcher eingehend untersucht wurde (Pusch, 1983 a; Brusewitz, 1984; Müller-Vonmoos & Kahr, 1985). Dieser hat ein Alter von etwa 450 Millionen Jahren und wurde vor etwa 280 Millionen Jahren durch eine darüberliegende Basaltintrusion vorübergehend während mehreren hundert Jahren auf mindestens 100°C erwärmt. Der Metabentonit besteht vor allem aus Smektit-Illit-Wechsellagerungen. Der Illit ist das häufigste Umwandlungsendprodukt des Montmorillonits. Andere mögliche Umwandlungsprodukte sind z. B. Kaolinit, Antigorit, Chlorit und Pyrophyllit. Die Umwandlung in Illit erfordert eine Erhöhung der negativen Zwischenschichtladung durch isomorphe Substitution von Si^{4+} durch Al^{3+}, sowie eine genügend hohe Konzentration von Kaliumionen, welche die bestehenden Zwischenschichtkationen ersetzen können.

Im folgenden sind die wichtigsten Faktoren, welche die Umwandlung von Bentonit beeinflussen, zusammenfassend beschrieben:

2.3.5.1 Temperatur

Bei hohen Temperaturen, d. h. > 300°C beginnt der Bentonit sein Zwischenschichtwasser abzugeben, was schliesslich zu einem irreversiblen Strukturzusammenbruch führt. Unterhalb von etwa 60°C ist jedoch die Stabilität, auch über geologische Zeiten hinaus, gewährleistet. Nach Brusewitz (1984) ist die Illitbildung unbedeutend, solange die Temperatur weniger als 100°C beträgt. Die Strukturwasserabgabe ist aber nach Grim (1968), falls gewisse Temperaturen nicht überschritten werden, reversibel und zwar für Na-Montmorillonit bis > 390°C und für (Ca, Mg)-Montmorillonit bis 300 - 390°C.

Erhöhte Temperatur begünstigt die isomorphe Substitution und damit die negative Schichtladung, da dann ein Aufbrechen der chemischen Bindungen in der Tetraederschicht erfolgen kann (Eberl & Hower, 1976).

2.3.5.2 Konzentration der Alkali- und Erdalkaliionen

Altaner (1984) fand, dass wenn das Molalitätsverhältnis $(Na^+ + Ca^{2+} + Mg^{2+}) / K^+ \geq 100$ betrug, der Anteil des Montmorillonits, welcher in Illit umgewandelt wird, geringer als 10 % war. Bei kleineren Verhältnissen nahm aber die umgewandelte Menge rasch zu. Das Vorhandensein einer genügenden Konzentration von K^+ ist aber wesentlich für die Illitisierung des Montmorillonites. Das hydratisierte K^+-ion ist etwas kleiner als das hydratisierte Na^+-ion und passt gerade in die hexagonalen Lücken der Tetraederschicht. Es wird daher mit grösserer Energie absorbiert als Na^+ (Eberl, 1984).

K^+-ionen können durch Auflösung von K-Felsspäten, welche im Gestein der Bohrloch- oder Stollenwand vorhanden sind, ins Porenwasser des Bentonits gelangen. Der Austauscheffekt ist aber beim Ca-Bentonit geringer als beim Na-Bentonit (Eberl, 1984). Das Ca^{2+}-ion wird weniger leicht ersetzt als Na^+. Bei höheren Temperaturen ist aber wahrscheinlich K^+ wiederum das bevorzugte Ion. Aus der Untersuchung natürlich vorkommender Tone weiss man ebenfalls, dass Ca^{2+} und Mg^{2+} die Umwandlung zu Illit/Smektit Wechsellagerungen hemmen (Grauer, 1986).

2.3.5.3 pH-Wert

Höhere pH-Werte beschleunigen im allgemeinen die Umwandlungsreaktionen. Dies wird darauf zurückgeführt, dass unter basischen Bedingungen die Mobilität sowohl von Aluminium wie Silizium erhöht ist, was isomorphe Ersatzvorgänge begünstigt. Johnston & Miller (1984) fanden aus Laborversuchen, dass bei etwa neutralem pH die Umwandlung von Smektit in Illit dominierte. Im basischen Bereich, bei Temperaturen unterhalb 150°C, wurde auch die Bildung von Zeolith beobachtet. Andererseits erfolgte bei leicht sauren Verhältnissen (pH ≈ 4 - 6) die Einlagerung von Aluminiumhydroxidschichten. Solche bewirken eine Verringerung der Quellfähigkeit und der Kationenaustauschkapazität. Für die Bildung von Aluminiumhydroxidschichten ist keine erhöhte Temperatur erforderlich. Die Adsorption von Al^{3+} soll aber bei hoher Ca^{2+} Aktivität gebremst sein (McBride & Bloom, 1977).

Bis anhin wurden aber Studien über Einfluss des pH-Wertes immer in wässerigen Lösungen von Bentonit durchgeführt. Beobachtungen an verdichteten Bentonitproben fehlen (Wassergehalt < 100 %). Der Wassergehalt spielt aber für die Stabilitätsbeurteilung eine Rolle und bei Temperaturen unter 60 - 70°C sind verdichtete Bentonite stabiler als Gele und wässerige Lösungen.

2.3.5.4 Einfluss von Eisen

Eisen kann auf zwei Arten die Stabilität des Bentonits beeinflussen, nämlich (1) durch das Vorhandensein von Eisen im Schichtgitter des Montmorillonites und (2) durch Wechselwirkung des Montmorillonites mit eisenhaltigen Korrosionsprodukten, welche sich bei Vorhandensein eisenhaltiger Gegenstände im Bohrloch bilden können. Dabei muss festgehalten werden, dass in Ca-Bentonit kleinere Effekte zu erwarten sind als in Na-Bentonit, da das divalente Ca^{2+}-ion von anderen zweiwertigen Ionen weniger bevorzugt wird als das monovalente Na^{+}-ion.

Bei eisenhaltigen Bentoniten ist im allgemeinen das Eisen in dreiwertiger Form in die Oktaederschicht des Montmorillonits gebunden (Müller-Vonmoos & Kahr, 1986). Durch Reduktion des Fe^{3+} zu Fe^{2+} kann grundsätzlich die negative Schichtladung erhöht werden. Bei genügendem

Kaliumzutritt könnten dann die Schichten irreversibel kollabieren (Grauer, 1985).

Die möglichen Veränderungen von Montmorillonit durch eisenhaltige Korrosionsprodukte wurde von Grauer (1986) behandelt. Bis anhin fehlen jedoch experimentelle Daten, um mögliche Auswirkungen mit einer gewissen Bestimmtheit voraussagen zu können. Nach dem heutigen Stand der Kenntnisse ist vor allem mit der Bildung neuer Phasen, wie z. B. Goethit, Limonit oder Greenalit zu rechnen. Dabei besteht die Tendenz, dass der Montmorillonit von diesen neuen Phasen umhüllt wird.

2.3.5.5 Radioaktive Strahlung

α-Teilchen und deren Rückstosskerne können die Kristallstruktur von Smektiten ändern. Dabei treten Aenderungen in der Kationenaustauschkapazität ein und die Quellfähigkeit wird reduziert (Ewing, 1984). Praktisch gesehen spielt jedoch dieser Einfluss bei Versiegelungs- und Verfüllungsproblemen eine untergeordnete Rolle, da nur ein geringer Anteil des Materials (in der unmittelbaren Umgebung von radioaktiven Quellen, z. B. Kanister) davon betroffen wird (Grauer, 1985).

2.3.6 Sorptionseigenschaften

Unter Sorption wird ein Austausch von Ionen im Porenwasser und in der Mineralsubstanz verstanden. Bei Tonmineralien kann ein Austausch sowohl mit Zwischenschichtionen wie auch mit oberflächenständigen OH-Gruppen erfolgen. Im letzteren Fall bilden sich Oberflächenkomplexe. Der Austausch der Zwischenschichtionen erfolgt als Kationenadsorption. Dagegen können aber bei der Bindung an oberflächenständigen OH-Gruppen sowohl Kationen wie auch Anionen beteiligt sein. Erfolgt die Adsorption als Kationenaustausch, so hängt ihr Ausmass stark von der Salinität des Wassers ab. Temperatureinflüsse sind im allgemeinen gering, aber können in gewissen Fällen auch bedeutend sein. Sie hängen nicht nur von der Mineralart, sondern auch von anderen Faktoren, wie z. B. der Temperarturabhängigkeit von Komplexgleichgewichten, ab. Für Versiegelungs- und Verfüllungsprobleme ist vor allem die Sorption von Radionukliden von Interesse.

Quantitativ können Sorptionsvorgänge durch den Verteilungskoeffizienten K_d beschrieben werden. Dieser ist als das Verhältnis Partikelkonzentration in der Festsubstanz zu Partikelkonzentration in der Lösung definiert. Eine Sammlung von K_d-Werten für verschiedene Bentonite, darunter auch MX-80 und Erbslöh Ca-Bentonit, wurde von Studer et al (1984) für eine grosse Anzahl von Ionen, speziell auch für Cs und Sr, gegeben. Weitere Angaben findet man in Grauer (1985), wo auch der Einfluss von Lösungskonzentration und Temperatur ersichtlich ist. Die Messungen wurden aber mehrheitlich in Batch-Versuchen, d. h. in wässerigen Lösungen durchgeführt und können nicht ohne weiteres auf Bentonitfestkörper übertragen werden. Der K_d-Wert kann aber auch aus Diffusionsmessungen bestimmt werden.

K_d-Werte für zahlreiche Radionuklide wurden im Rahmen der Projekte Gewähr von McKinley (1984) abgeschätzt , ohne die Art des verdichteten Bentonits zu spezifieren. Diese Werte sind in Tabelle VIII wiedergegeben (aus Studer et al, 1984).

Tabelle VIII: Sorptionskoeffizienten K_d (m3/kg)

Ionenart	realistische Schätzung	konservative Schätzung
Ac	5	1
Am	5	1
Cs	0.2	0.05
C	0	0
Cm	5	1
I	0.005	0.001
Pb	0.2	0.001
Mo	0.005	0.001
Np	1	0.1
Pd	0.005	0.001
Pu	5	0.1
Pa	0.25	0.001
Ra	0.2	0.02
Rn	0	0
Sm	2.5	0.25
Se	0.005	0.001
Tc	0.1	0.01
Th	5	0.005
Sn	0.05	0.001
U	0.5	0.02
Zr	5	0.5

2.3.7 Ionendiffusion

Ionen diffundieren infolge örtlicher Konzentrationsunterschiede. Um den Diffusionsvorgang quantitativ erfassen zu können, wird ein Diffusionskoeffizient definiert. Grundsätzlich unterscheidet man dabei (Neretnieks, 1982; Grauer, 1985):

- den Diffusionskoeffizienten, D_v, in der mikroskopisch wässerigen Phase, d. h. im freien Wasser.

- die Porendiffusivität, D_p, für den Fall einer idealen unregelmässigen Pore ohne Wechselwirkung mit der Porenwandung. D_p hängt von der Porengeometrie (Verengung und Verminderung der Poren) ab, d.h. $D_p = D_v \, \delta/\tau^2$, wobei δ = Porenverengungsfaktor und τ = Porenverwindungsfaktor

- die effektive Diffusivität, D_e, welche die stationäre Diffusion in einem Porensystem (wie z. B. Bentonit) einschliesslich Interaktionseffekte mit den Porenwandungen, beschreibt
  ($D_e = \varepsilon \cdot D_p$) ($\varepsilon$ = Porosität)

- die scheinbare (apparente) Diffusivität, D_a, welche aus instationären Versuchen bestimmt wird, und welche die Effekte allfälliger Ionenadsorptionen einschliesst.
  $D_a = D_p/R$ wobei R als Retentionsfaktor gekennzeichnet ist.

Im allgemeinen gilt: $D_a < D_e < D_v$, was aber bedingt, dass keine Oberflächendiffusion stattfindet.

Frühere Untersuchungen über das Diffusionsverhalten wurden meistens mit Kationen in Bentoniten mit hohem Wassergehalt durchgeführt. Diffusionsmessungen in hochverdichteten Bentoniten wurden zuerst wiederum in Schweden realisiert. Diese Versuche erfolgten mit der radioaktiven Tracer-Technik an gesättigten Bentonitproben. Dabei wurde entweder eine ebene Tracer Quelle in die Mitte eines Bentonitkörpers eingebaut (Torstenfelt et al, 1982) oder die Quelle wurde an einem Ende der Probe als radionuklid-enthaltende Bentonitschicht oder als Flüssigkeit

angebracht. Durch Bestimmung der Radionuklid-Verteilung nach einer bestimmten Zeit als Funktion des Abstandes von der Quelle kann aus solchen instationären Versuchen die scheinbare Diffusivität, D_a, ermittelt werden. Dabei wird die eindimensionale Form des Fick'schen Diffusionsgesetzes verwendet mit D_a als Diffusionskonstante (Neretnieks, 1982; Grauer, 1985). Die Porendiffusivität wurde dann aus der Beziehung

$$D_p = R\, D_a \qquad (10)$$

gerechnet, wobei $R = 1 + \rho_d\, K_d\, \frac{1 - \varepsilon}{\varepsilon}$

und ρ_d = Trockendichte der porösen Festsubstanz
K_d = Verteilungskoeffizient für Sorption
ε = Porosität

Diese Beziehung setzt aber voraus, dass der K_d-Wert räumlich und zeitlich konstant und insbesondere auch konzentrationsunabhängig ist (bei geringer Konzentration i.a. erfüllt), keine Oberflächendiffusion stattfindet, die Materialprobe gesättigt ist und der volle Porenquerschnitt für die Wanderung der Ionen (ohne Beeinflussung der Festsubstanz) zur Verfügung steht.

Diffusionskoeffizienten (oder Diffusivitäten) aus Versuchen an gesättigtem, hochverdichtetem Bentonit sind in Tabellen IX und X wiedergegeben. Die Resultate zeigen, dass das klassische Porenmodell für hochverdichteten Bentonit nur beschränkt realistische Werte für die Diffusionskoeffizienten D_p gibt. So ergeben sich z. B. für Strontium und Caesium abnormal hohe Werte für D_p, d. h. diese Ionen wandern viel schneller als die übrigen und sogar schneller als im freien Wasser. Dies lässt vermuten, dass ein Teil der Migration durch Oberflächendiffusion entlang negativ geladener Tonmineralienoberflächen erfolgt (Pusch et al, 1982; Neretnieks, 1982). Leitfähigkeitsmessungen weisen nämlich darauf hin, dass die Diffusion in den Zwischenschichträumen viel langsamer ist als über die äussere Oberfläche der Tone.

Es muss hierzu aber bemerkt werden, dass, wenn ein äusseres Druckpotential vorliegt, welches einen zusätzlichen Fluss zu erzeugen vermag,

sich dieser der eigentlichen Diffusion überlagert und dabei eine Porendiffusion von Sr^{2+} und Cs^{+} ermöglicht, die schneller als diejenige im freien Wasser sein kann (Kahr, 1987).

Tabelle IX Scheinbare Diffusionskoeffizienten, $D_a \cdot 10^{12}$ m2/s für gesättigten hochverdichteten Bentonit (Studer et al, 1984)

Referenz Material	Torstenfelt et al (1983) MX-80	Torstenfelt et al (1983) MX-80 (Maximalw.)	Eriksen (1981) Eriksen & Jacobsson (1981) MX-80 (Maximalw.)	Neretnieks (1982) Keine Angabe
Sr	1.8	12	23	25
Am	0.004	0.014		0.015
Cs	1.4	2.0	7.5	8
I	0.032	0.12	4	9
Cl			6	
HS			9	
Np	0.22	0.37		0.4
Pu	0.0069	0.03		0.03
Pa	>0.57	>0.6		1
Ra				25
Tc	1.4	5.3 (53)		53
Th	0.0046	0.0085		0.01
U	0.58	0.82		1

Tabelle X Porendiffusivität, $D_p \cdot 10^{12}$ m2/s für gesättigten, hochverdichteten Bentonit (Studer et al, 1984)

Referenz Material	Torstenfelt et al (1983) MX-80	Eriksen (1981) Eriksen & Jacobsson (1981) MX-80 *) ($D_p \cdot \varepsilon \cdot 10^{12}$)	Neretnieks (1982) keine Angabe
Sr	31'000		10'000 - 67'000
Cs	1'800		1'800 - 9'000
I	0.1	0.21	4
Cl		0.31	6
HS		0.018	9
H_2		3.6	
Np	52		52 - 88
Tc	1.4		
U	19		

*) aus stationären Diffusionsmessungen

Andererseits zeigen Anionen, wie z. B. I^- und Cl^- eine geringere Diffusivität als aus dem Porenmodell erwartet. Dies wird dadurch erklärt, dass die relativ grossen Anionen nur in grösseren Poren wandern können und deshalb nicht der gesamte Porenquerschnitt zur Verfügung steht (Neretnieks, 1982). Die Diffusivität im freien Wasser, D_v, beträgt für die meisten Ionen $1 - 3 \cdot 10^{-9}$ m2/s.

Kahr et al (1985) führten Diffusionsmessungen an ungesättigten, hochverdichteten Proben von MX-80 und Montigel durch. Die apparenten Diffusionskoeffizienten wurden aus der Konzentrationsverteilung der diffundierenden Ionen ermittelt. Die bei einem Wassergehalt von 25 % ermittelten Werte sind in Tabelle XI zusammengestellt. In Fig. 13 sind die apparenten Diffusionskoeffizienten von Sr^{2+}, Cs^+, UO_2^{2+} und Th^{4+} in Abhängigkeit vom Wassergehalt aufgetragen. Man erkennt, dass zwischen den Diffusionskoeffizienten für MX-80 und für Montigel keine signifikanten Unterschiede bestehen.

Tabelle XI Scheinbare Diffusionskoeffizienten, für ungesättigten, hochverdichteten Bentonit bei 25 % Wassergehalt.

Ionenart	Diffusionskoeffizient $D_a \cdot 10^{12}$ m2/s
Cl^-	100
I^-	100
K^+	30
Sr^{2+}	10
Cs^+	2
UO_2^{2+}	<0.1
Th^{4+}	<0.1

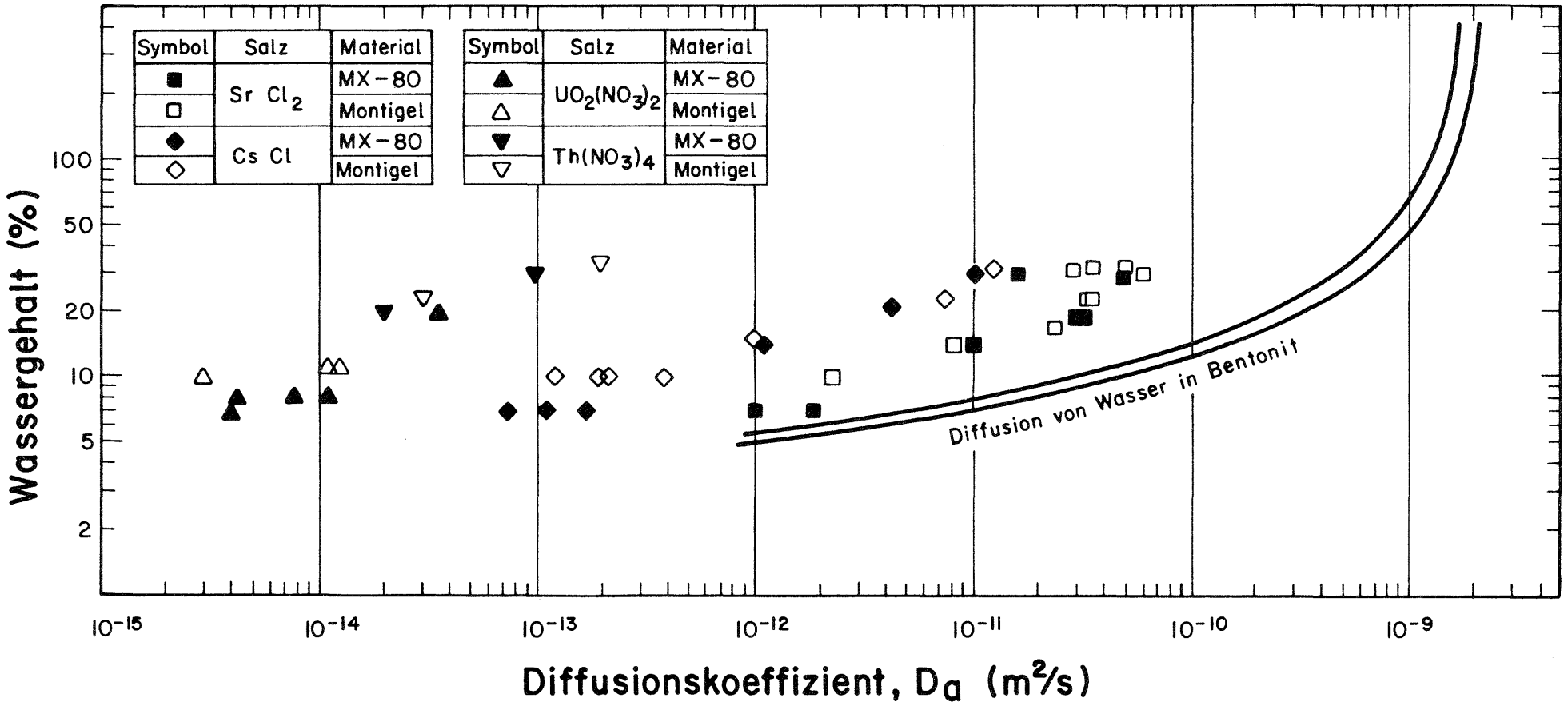


Fig. 13 Diffusionskoeffizienten verschiedener Ionen in MX-80 und Montigel bei verschiedenen Wassergehalten (Daten aus Kahr et al, 1985)

In Fig. 13 sind auch zwei Kurven eingetragen, die den Bereich der Diffusivität von Wasser im Bentonit angeben. Die Diffusivitäten der Ionen Cl^- und I^- in Tabelle XI sind von der gleichen Grössenordnung wie diejenige von Wasser. Dies lässt sich dadurch erklären, dass diese Ionen sehr schwach sorbiert werden. Andererseits sind aber die Werte der Diffusivitäten von Cl^- und I^- in Tabelle XI bedeutend höher als diejenigen in Tabelle IX, welche an quellenden Proben in Oedometern ermittelt worden sind. Unter Verwendung einer stationären Tracer-Methode mit einer Bentonitmembran haben aber auch Eriksen & Jacobsson (1984) ähnliche Diffusivitätswerte für Cl^- und I^-, wie in Tabelle XI angegeben, berechnet. Diese liegen zwischen 35 und 90 $\cdot$ 10^{-12} m2/s. Offenbar spielt bei der Bestimmung der Diffusionskonstanten die Versuchsanordnung eine grosse Rolle.

Unter Annahme eines Retentionsfaktors vom Wert 1 für Cl^- und I^- (d. h. $D_a \approx D_p$) lassen sich aus den Werten der Tabelle XI auch die Retentionsfaktoren der Kationen aus dem Verhältnis der Diffusionskoeffizienten grössenordnungsmässig ermitteln.

2.4 Thermische Eigenschaften

Die thermischen Eigenschaften von hochverdichtetem Bentonit sind vor allem im Hinblick auf die Ableitung der in einem Endlager entstehenden Wärme an das umgebende Gestein untersucht worden. Für Bohrlochversiegelungsfragen sind diese Eigenschaften von untergeordneter Bedeutung. Knutsson (1983) bestimmte die Wärmeleitfähigkeit λ, die thermische Diffusionskonstante κ, und die Wärmekapazität, C, von hochverdichtetem MX-80. Kahr & Müller-Vonmoos (1982) ermittelten die Wärmeleitfähigkeit von hochverdichtetem MX-80, Montigel und Montigel K.

Definitionsgemäss ist die (volumetrische) Wärmekapazität, C, die Wärmemenge, welche notwendig ist um ein Einheitsvolumen eines Materials um 1°K zu erwärmen.

$$C\ [J/m3°K] = c_m\ [J/kg\ °K] \cdot \rho\ [kg/m3] \qquad (11)$$

wobei c_m = spezifische Wärmekapazität (Wärmemenge pro Masse)
ρ = Dichte

Die Wärmeleitfähigkeit, λ [W/m °K], ist die Wärmemenge, die pro Zeiteinheit durch einen Einheitsquerschnitt des Materials fliesst, wenn senkrecht zur Querschnittsfläche ein Temperaturgradient von 1°K/m existiert.

Der thermische Diffusionskoeffizient ergibt sich aus:

$$\kappa[m2/s] = \lambda/C \qquad (12)$$

In Fig. 14 sind einige Leitfähigkeitswerte, welche von Kahr & Müller-Vonmoos (1982) und von Knutsson (1983) gemessen wurden als Funktion der Dichte aufgetragen. Ebenfalls eingezeichnet in Fig. 14 ist die von Kahr & Müller-Vonmoos (1982) abgeleitete empirische Beziehung (gültig für Raumtempertur):

$$\lambda = -\ 0.56 + 0.60\ \rho + 0.004\ w \cdot \rho^3 \qquad (13)$$

wobei w = Wassergehalt in %

Knutsson (1983) schlug eine Beziehung für λ als Funktion der Porosität n und des Sättigungsgrades S_r (anstelle von Dichte und Wassergehalt) vor in der Form:

$$\lambda = 0.034\ n^{-2.1} + (1 + \log S_r)(0.56^n \cdot 2^{1-n} - 0.56^n \cdot n^{-2.1}) \qquad (14)$$

Diese Beziehung ist ebenfalls in Fig. 14 eingetragen.

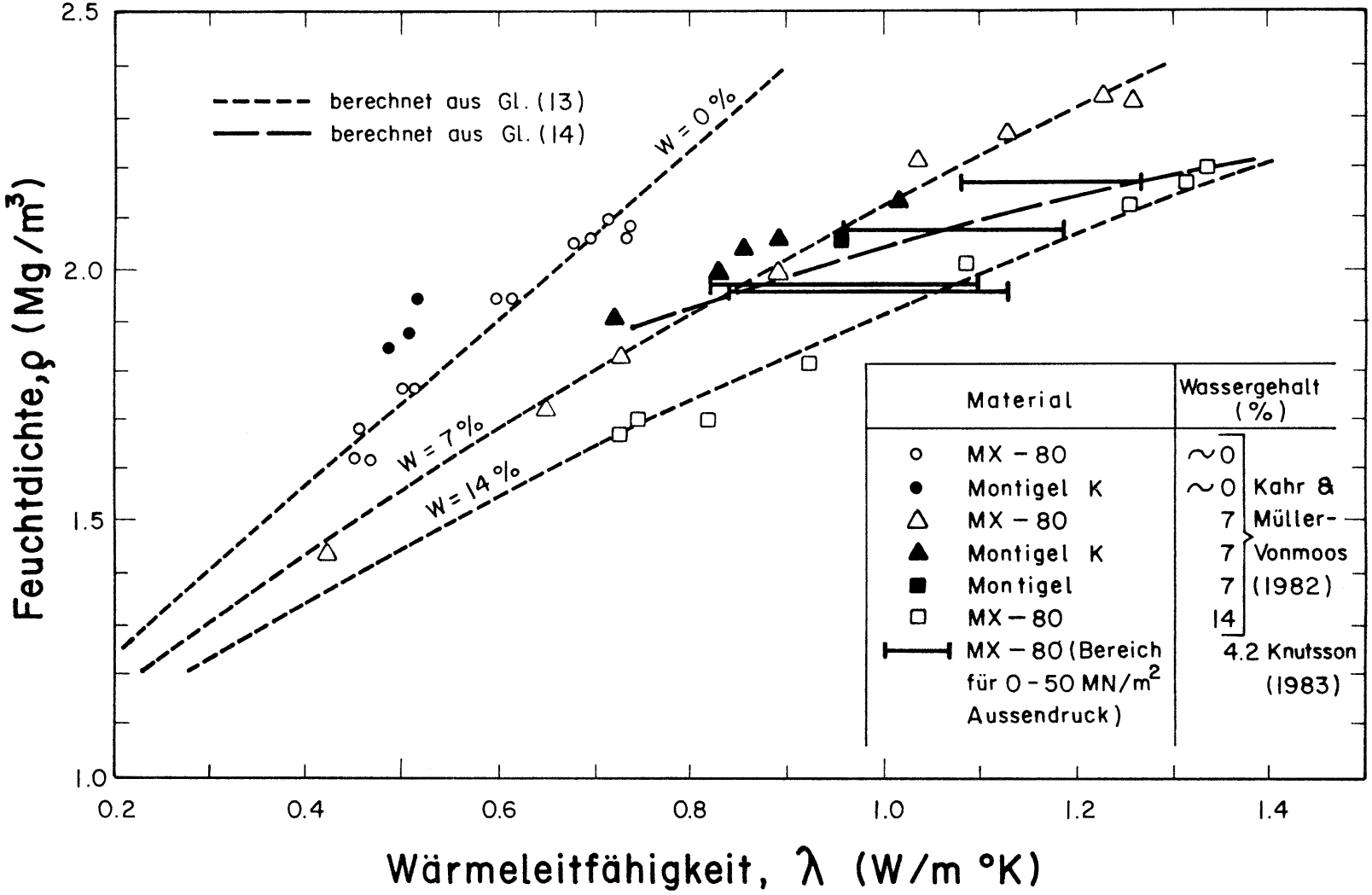


Fig. 14 Wärmeleitfähigkeit von MX-80, Montigel und Montigel K bei Raumtemperatur in Abhängigkeit der Dichte bei verschiedenen Wassergehalten (Daten aus Kahr & Müller-Vonmoos, 1982; Knutsson, 1983)

Die Versuche von Knutsson wurden mit der instationären Heizstreifen (transient hot stip) Methode durchgeführt. Diese Methode hat den Vorteil, dass die Messung in einem kleinen Zeitintervall erfolgen kann, während welchem die Wassergehaltsverteilung als konstant angenommen werden darf. Kahr & Müller-Vonmoos verwendeten die ebenfalls instationäre Heizdrahtmethode.

Es darf daher erwartet werden, dass die beiden Methoden vergleichbare Resultate liefern sollten. Knutsson (1983) weist aber darauf hin, dass die Beziehung von Kahr & Müller-Vonmoos (Gleichung 13) die Wärmeleitfähigkeit im Falle von unter einem Aussendruck (oder Quelldruck) stehenden Proben um etwa den Faktor 1.5 unterschätzt, offenbar deshalb weil die Beziehung (13) an Proben, welche unter niedrigem Aussendruck standen, abgeleitet wurde. Die in Fig. 14 als horizontale Linien eingetragenen Messwerte von Knutsson zeigen denn auch die Abhängigkeit vom Aussendruck für einen gegebenen Wert der Feuchtdichte und des Wassergehaltes.

Die wesentlichsten Resultate über das Wärmeverhalten des hochverdichteten Bentonits können wie folgt zusammengefasst werden:

(1) Es bestehen keine signifikanten Unterschiede in den thermischen Eigenschaften zwische MX-80, Montigel und Montigel K (siehe auch Fig. 14).

(2) Die Wärmeleitfähigkeit nimmt mit steigender Dichte des Bentonits zu (Fig. 14).

(3) Die Wärmeleitfähigkeit steigt mit zunehmendem Wassergehalt, da Wasser in den Poren ein besserer Wärmeleiter ist als Luft.

(4) Bei gleichem Wassergehalt steigt die Wärmeleitfähigkeit mit zunehmendem Aussendruck (der auch ein Quelldruck sein kann). In Fig. 14 ist der Variationsbereich von λ infolge Aussendruckänderungen für vier verschiedene Dichten angezeigt. Das linke und rechte Ende geben λ für 0 bzw. 50 MN/m2 Aussendruck).

(5) Bei trockenen Proben steigt die Wärmeleitfähigkeit mit steigender Temperatur geringfügig an, d. h. etwa mit $0.01 \cdot T^{0.5}$ (wobei T = Temperatur in °C). Bei wasserhaltigen Proben nimmt bei einer gegebenen Temperatur die Wärmeleitfähigkeit mit der Zeit zuerst etwas zu, um dann beim Beginn des Austrocknens wieder abzusinken, bis sich zwischen der Temperatur und dem Wassergehalt ein Gleichgewicht gebildet hat.

(6) Nach Knutsson (1983) kann die volumetrische Wärmekapazität C von Bentonit bei Wasseraufnahme nach der Formel

$$C = \frac{\rho}{1+w} (c_s + c_w \cdot w) \qquad (15)$$

berechnet werden, wobei c_s = Wärmekapazität von trockenem Bentonit und c_w = Wärmekapazität von Wasser (= $4.2 \cdot 10^6$ J/kg °K)

(7) Als Richtwerte für die thermischen Eigenschaften von Bentonit können folgende Zahlen angegeben werden:

a) Bei Wassergehalten zwischen 0 und 14 % und Dichten zwischen 1.45 und 2.4 Mg/m3 variiert die Wärmeleitfähigkeit bei geringem Aussendruck zwischen 0.4 und 1.3 W/m °K. Für vollständig gesättigten Bentonit mit Feuchtdichten zwischen 2.0 und 2.1 Mg/m3 schätzt Knutsson (1983) die Wärmeleitfähigkeit auf 1.35 - 1.45 W/m °K. Diese Werte gelten für Raumtemperaturen.

b) Die spezifische Wärmekapazität variiert etwa zwischen $0.8 \cdot 10^6$ und $1.1 \cdot 10^6$ J/kg °K, wobei die höheren Werte bei einem guten Kontakt zwischen der Wärmequelle und dem Bentonit erreicht werden (Knutsson, 1983).

c) Die volumetrische Wärmekapazität für gesättigten Bentonit mit ρ = 2.0 - 2.1 Mg/m3 beträgt etwa $3.1 \cdot 10^6$ bis $3.4 \cdot 10^6$ J/m3 °K.

3. BEURTEILUNG DER VORHANDENEN DATEN

3.1 Anforderungsprofil für Versiegelungsmaterialien

Bei der Versiegelung eines Bohrloches sollte idealerweise der ursprüngliche Zustand wie er vor der Bohrung bestanden hatte, wieder hergestellt werden. Da dies aber technisch nicht durchführbar ist, beschränkt man sich auf die Auflage, dass die Barrierenwirkung nach der Versiegelung mindestens so effektiv sein soll wie die des ursprünglichen Gesteins vor dem Bohren. Mit dem Versiegelungspfropfen wird aber ein Fremdmaterial in den Gebirgskörper eingeführt. Die dadurch nicht zu vermeidende Wechselwirkung zwischen dem Pfropfenmaterial und dem Wirtgestein erschwert zusätzlich die Eignungsbeurteilung eines möglichen Materials.

Die wichtigste Aufgabe eines Versiegelungspfropfens, oder Schlüsselzone in einem Bohrloch, ist die Barrierenwirkung für Wasserfluss (Pusch, 1981). Es soll verhindert werden, dass zwischen den verschiedenen Grundwasserträgern, dem Lager und der Biosphäre ein hydraulischer Kurzschluss entsteht. Daher ist die Permeabilität des Systems Pfropfen-Wirtgestein mit allen sie beeinflussenden Faktoren, die wichtigste zu kontrollierende Grösse.

Für das Verhalten einer Schlüsselzone sind nicht nur die Eigenschaften des Pfropfenmaterials massgebend, sondern auch folgende Faktoren:

- Art des Einbringens an die gewünschte Stelle im Bohrloch
- Beschaffung der Kontaktzone Pfropfen-Bohrlochwand
- Haftvermögen (Scherfestigkeit) Pfropfen-Bohrlochwand
- Konsolidationssetzung des Pfropfens unter Eigengewicht
- Thermodynamische Verträglichkeit zwischen Pfropfenmaterial und Wirtgestein
- Relative Steifigkeit und Verformbarkeitsverträglichkeit mit dem Wirtgestein, auch unter Temperaturgradienten

Studer et al (1984) haben bezüglich Anforderungsprofil acht Materialeigenschaften unterschieden, nämlich:

- Festigkeit (kurzzeitig wichtig für die Einbringphase und langzeitig für die strukturelle Integrität des Bohrloches)

- Deformationsverhalten (Material sollte nicht spröde sein, um Gebirgsverformungen ohne Risse mitmachen zu können)

- Durchlässigkeit (sollte möglichst gering sein)

- Ionenretention (erwünscht sind kleine Diffusivität und hohes Sorptionsvermögen)

- Langzeitstabilität (chemisch: Material sollte sich während der Auslegungszeit unter den gegebenen Umweltbedingungen nicht verändern, insbesondere sollten auch keine Reaktionen mit dem Wirtgestein stattfinden; mechanisch: Material sollte durch eventuelle Wasserströmungen im Fels nicht erodiert werden)

- Selbstheilung (Heilung von infolge mechanischer Beanspruchung entstandenen Rissen im Pfropfen durch Quellen, plastische Verformung, etc.)

- Wärmeleitfähigkeit (Ableitung von erzeugter Wärme in einem Endlager; diese Eigenschaft ist für Bohrlochschlüsselzonen im allgemeinen nicht relevant)

- Handhabbarkeit (Material kann in eine für die Versiegelung wünschenswerte Form gebracht werden, z. B. wichtig für das Einbringen vorgeformter Pfropfenelemente).

In Figur 15 ist die tatsächliche Bewertung dieser acht Materialeigenschaften für hochverdichteten Bentonit den gewünschten Anforderungen gegenübergestellt. Bei der 10-teiligen Punkteskala bedeuten eine höhere Punktezahl einerseits eine bessere Erfüllung der Wunschvorstellungen bezüglich der Materialeigenschaften und andererseits eine grössere Wichtigkeit der gestellten Anforderung. Wenn ein mit der Schraffur für die Materialeigenschaften belegtes Feld rechts vom Feld, welches die Anforderungen angibt, liegt, oder sich mit diesem überlappt, so bedeutet dies, dass der hochverdichtete Bentonit die Anforderung bezüglich.

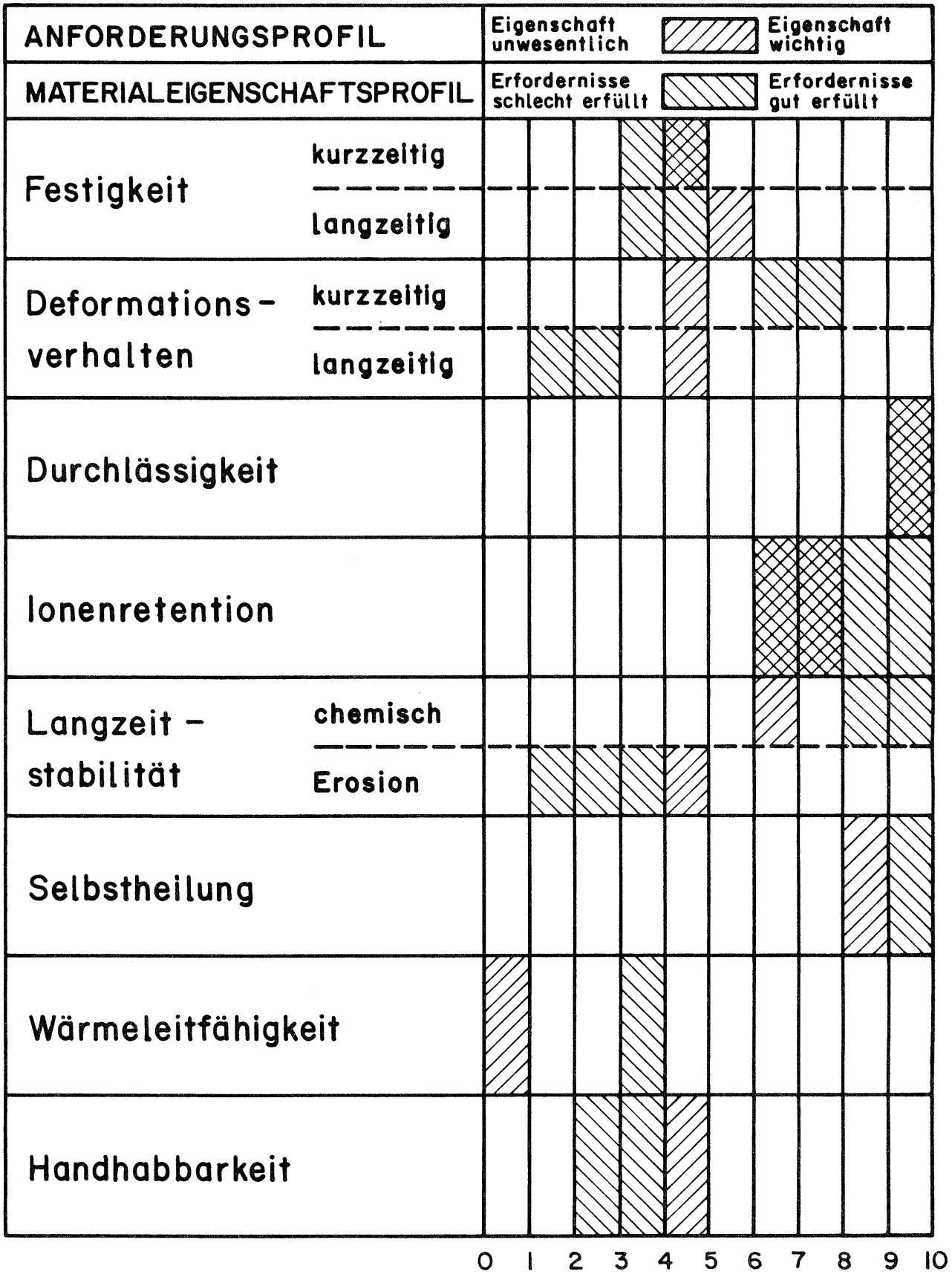


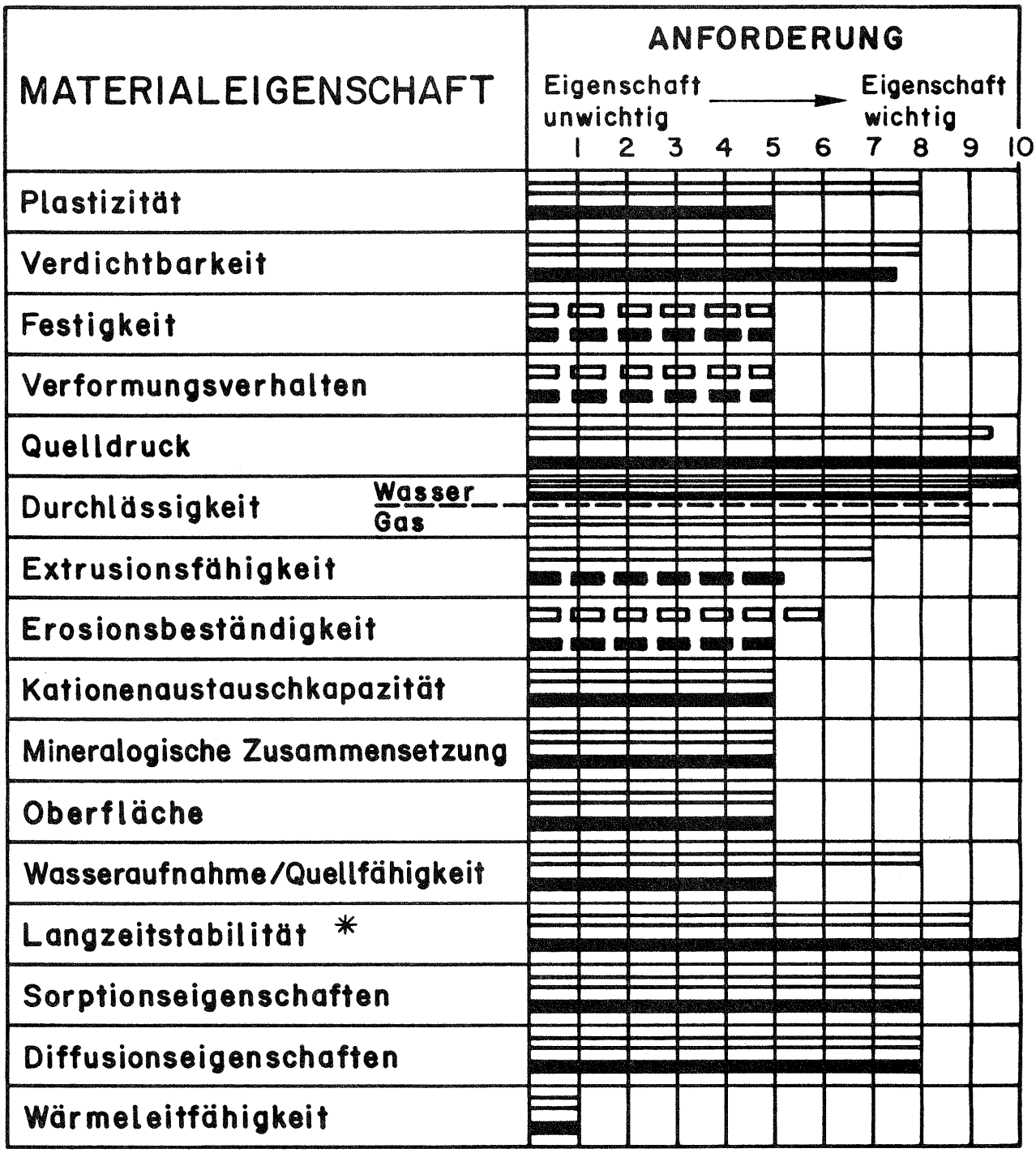
Fig. 15 Vergleich Anforderungsprofil und Materialeigenschaftsprofil für die Versiegelung von Bohrlöchern mit Bentonit

der Eigenschaft in der betreffenden Zeile erfüllt. Wie Figur 15 zeigt, trifft dies zu für kurzzeitiges Deformationsverhalten, Durchlässigkeit, Ionenretention, chemische Langzeitstabilität, Selbstheilung und Wärmeleitfähigkeit. Hervorzuheben ist hier, dass diese Liste nun auch die wichtigsten zu erfüllenden Eigenschaften enthält, nämlich die Durchlässigkeit, die Ionenretention und die chemische Langzeitstabilität. Andererseits ist Bentonit nicht ganz befriedigend hinsichtlich der Erosionsbeständigkeit, des Langzeitfestigkeits- und Deformationsverhaltens, sowie bezüglich der Handhabbarkeit. Für die Sicherheitsanalyse sind diese Eigenschaften aber weniger bedeutend als zum Beispiel die Durchlässigkeit und die Langzeitstabilität.

3.2 Vergleich von Montigel mit MX-80

Aufgrund des im Kapitel 2 gegebenen Ueberblicks der Eigenschaften von Montigel und MX-80 kann nun ein Vergleich der relativen Eignung als Material für Bohrlochschlüsselzonen gemacht werden. Für einige Eigenschaften stehen nur Daten von MX-80 zur Verfügung und ein Vergleich ist nicht möglich oder muss geschätzt werden.

Figur 16 zeigt eine semi-quantitative Bewertung der verschiedenen Eigenschaften. Mit der 10-teiligen Anforderungsskala soll wiederum auf die relative Wichtigkeit der verschiedenen Eigenschaften hingewiesen werden. Für Eigenschaften wie Kationenaustauschkapazität, mineralogische Zusammensetzung, oder Oberfläche, welche eine indirekte Wirkung auf die Haupteigenschaften wie Plastizität, Durchlässigkeit, Langzeitstabilität haben, wurde generell eine Anforderungszahl 5 zugeordnet. Bei Eigenschaften, für welche eher ungenügende Daten vorhanden sind, wurde der Bewertungsbalken gestrichelt gezeichnet. In der Figur kennzeichnet der längere Balken das günstigere Material für eine bestimmte Materialeigenschaft. So ist z. B. die Langzeitstabilität des Montigels in Ca-reichem Grundwasser des Oberbauenstockgebietes etwas besser als diejenige von MX-80. Umgekehrt hat MX-80 eine etwas geringere Permeabilität für Wasser als Montigel, usw.



* für die Verhältnisse am Oberbauenstock

MX – 80

Montigel

Fig. 16 Vergleich zwischen MX-80 und Montigel im Hinblick auf deren Verwendung als Versiegelungsmaterialien in Schlüsselzonen von Bohrlöchern

Man erkennt aus Fig. 16, dass oft MX-80 etwas günstigere Eigenschaften aufweist als Montigel. Die Unterschiede sind aber, mit Ausnahme der Plastizität, gering. Die Fliessgrenze ist jedoch beim Na-Bentonit ganz erheblich höher als beim Ca-Bentonit. Dies hat einen wesentlichen Einfluss auf die Wasseraufnahmefähigkeit sowie die Extrusionsfähigkeit und das Selbstheilungsvermögen.

3.3 Bestehende Unsicherheiten

Sowohl Kapitel 2 wie auch Fig. 16 zeigen, dass für gewisse wichtige Materialeigenschaften wie Festigkeit, Verformungsverhalten, Extrusionsfähigkeit und Erosionsbeständigkeit der zur Verfügung stehende Datensatz eher ungenügend ist. Solche Daten werden sowohl für den Einbau von hochverdichtetem Bentonit in eine Schlüsselzone benötigt wie auch zur Beurteilung des Langzeitverhaltens in mechanischer Hinsicht. Die fehlende Information kann durch geeignete und sorgfältig geplante Laborversuche erhalten werden.

3.4 Eignungsbeurteilung von Ca-Bentonit aufgrund bisheriger Daten

Die vorhergehenden Betrachtungen haben gezeigt, dass Ca-Bentonit in der Form von Montigel gemäss gegenwärtigem Wissensstand gegenüber dem MX-80 fast ebenbürtige Eigenschaften aufweist. In gewissen Eigenschaften, wie Quelldruckentwicklung, chemische Stabilität im Ca-reichen Grundwasser, ist sein Verhalten sogar günstiger als dasjenige des MX-80. Die relativ geringe Widerstandsfähigkeit gegenüber Erosion, ein allgemein etwas schwacher Punkt bei Bentoniten, kann durch geeignete Plazierung der Schlüsselzonen in intakte, kluft- und rissfreie Strecken im Bohrloch bewältigt werden. Damit verliert auch die Extrusionsfähigkeit und das Selbstheilungsvermögen an Wichtigkeit, denn es darf angenommen werden, dass auch bei eventuellen späteren Gebirgsbewegungen solche Zonen kaum Verschiebungen erleiden werden. Letztere würden bevorzugterweise entlang bestehender Diskontinuitäten stattfinden und ursprünglich intakte Zonen würden eher Verformungen unter mehr oder weniger konstantem Volumen erleiden. Der offensichtliche Nachteil der

bedeutend geringeren Plastizität des Montigels gegenüber dem MX-80 fällt daher kaum mehr ins Gewicht.

Die wichtigste Aufgabe der Schlüsselzone im Bohrloch nämlich die Abdichtungsfunktion (Barrierenwirkung) gegenüber Felsgrundwasser (und in unmittelbarer Nähe des Endlagers auch gegenüber Gasen und Radionukliden) kann von Montigel mit praktisch gleicher Sicherheit wie durch MX-80 übernommen werden.

Während über den Chemismus des Grundwassers an den Standorten Piz Pian Grand und Bois de la Glaive wenig bekannt ist, können über die Verhältnisse in den Valanginienmergeln des Oberbauenstocks beschränkte Aussagen gemacht werden. Nach Schneider & Kappeler (1984) soll das aus karbonatreichen Mergeln stammende Wasser erstaunlicherweise sehr weich und alkalisch sein. Ferner wurde ein Gehalt an Chlorid, Ammonium und Sulfid (Schwefelwasserstoff) festgestellt. In Verbindung mit Chlorid wurde aber auch Natrium ermittelt. Für das Vorhandensein von Sulfid wird als Ursache die Umwandlung des im Gestein vorhandenen Pyrits angesehen. Solche Reaktionen sind auch in kristallinen Gesteinen beobachtet worden und könnten daher auch im Gebiet des Piz Pian Grand auftreten. Der pH-Wert des Grundwassers variiert zwischen etwa 7.5 und 9 und begünstigt damit eher Umwandlungsreaktionen. Aufgrund der in Abschnitt 2.3.5 gemachten Angaben darf aber trotzdem angenommen werden, dass der hochverdichtete Ca-Bentonit während der geforderten Anlagezeit von etwa 10^5 Jahren durchaus stabil bleibt. Auch geringfügige Umwandlungen werden seine Quellfähigkeit nicht wesentlich beeinflussen. Weitere Untersuchungen des Grundwassers im Oberbauenstock Gebiet werden noch genauere Prognosen erlauben.

4. SCHLUSSFOLGERUNGEN

In diesem Bericht wurde eine kurzgefasste übersichtliche Darstellung der wichtigsten bis heute bekannten Daten über die Eigenschaften von hochverdichtetem Bentonit angestrebt. Die dazu benutzten Versuchsergebnisse stammen fast ausschliesslich aus schweizerischen und schwedischen Quellen. Die untersuchten Materialien bestanden aus einem Na-Bentonit (MX-80) und einem Ca-Bentonit (Montigel). Die Zusammenstellung der Daten ermöglicht einen Vergleich der beiden Bentonite, unabhängig von der geplanten Verwendung.

Diese Studie ist auf reinen Bentonit beschränkt, in der Annahme, dass dieses Material sich für die Versiegelung von Schlüsselzonen in Sondierbohrungen eignen kann. Andere Materialien, wie auch Gemische von Bentonit und Sand, wurden nicht betrachtet. Die zu verfüllenden Mengen sind klein und Materialkosten fallen gegenüber den Kosten zur Erstellung des Bohrloches oder zum Einbringen der Versiegelung überhaupt nicht ins Gewicht.

Die Gegenüberstellung der für die Versiegelung relevanten Daten von MX-80 und Montigel hat gezeigt, dass sich diese beiden Materialien in den meisten Eigenschaften nur wenig unterscheiden. Der grösste Unterschied besteht in der Plastizität, indem MX-80 eine bedeutend höhere Fliessgrenze und damit ein grösseres Wasseraufnahmevermögen aufweist. Diese Tatsache bedingt auch eine bessere Fähigkeit zur Selbstheilung von Rissen im Pfropfen selbst oder zum Eindringen in Risse in der Bohrlochwand im Falle von MX-80. Doch dieser Vorteil verliert an Bedeutung, wenn man gedenkt, die Schlüsselzonen nur in solchen Bohrlochabschnitten auszubilden, wo beim Bohren relativ intakte, rissarme Zonen angetroffen wurden. Ein Eindringen in Klüfte erübrigt sich dann und das Risiko potentieller Risse im Kern selbst kann durch die Beschränkung der Länge solcher Schlüsselzonen auf maximal etwa 10 m ebenfalls vermindert werden.

Die Langzeitstabilität beider Materialien ist ähnlich, doch ist in mit Ca^{2+}-Ionen angereicherten Grundwässern Montigel vorzuziehen, da damit ein Ionenaustausch stark eingeschränkt wird und auch die Tendenz zur Illitisierung des Bentonits verringert wird.

Der grosse Vorteil von Bentonit gegenüber jedem anderen Material ist seine Quellfähigkeit und die Möglichkeit, bei verhindertem Quellen einen Druck auszuüben. Die Quelldrücke, die sich mit MX-80 oder Montigel entwickeln können, sind sehr ähnlich.

Ein gewisser Nachteil bei beiden Bentoniten ist die relativ geringe Festigkeit, vor allem nach der Wasseraufnahme. Wenn aber die Versiegelung als Multikomponentenpfropfen, d. h. mit mehr als einem Material in der Versiegelungsstrecke (z. B. Bentonit mit Zement) konzipiert wird, so erübrigen sich auch hier die Bedenken. Das eine Material kann dann vor allem die Festigkeitsfunktion übernehmen, und somit für die Integrität der Versiegelung im Gebirgsmassiv sorgen, währenddem der Bentonit allgemein die eigentliche Barrierenfunktion der Abdichtung übernimmt.

Mit den bis heute vorliegenden Kenntnissen darf gesagt werden, dass sich Bentonit als Versiegelungsmaterial in Schlüsselzonen von Sondierbohrungen eignet. Insbesondere eignet sich auch der Ca-Bentonit "Montigel" für die in der Schweiz vorgesehenen Endlagerstandorte, falls vorwiegend Ca-haltiges Grundwasser angetroffen wird.

5. LITERATURVERZEICHNIS

Altaner, S.P., 1984. Zoned K-bentonites: evidence for the effect of solution chemistry on the smectite to illite reaction. In: Smectite alteration, D.M. Anderson, ed., SKB/KBS Technical Report 84-11, pp. 5 - 8.

Brusewitz, A.M., 1984. Illite-smectite minerals in Ordovician bentonites in Sweden. In: Smectite alteration, D.M. Anderson, ed., SKB/KBS Technical Report 84-11, pp. 19 - 21.

Bucher, F., Jedelhauser, P. & Jeger, P., 1985. Schrumpfversuche an Bentonitproben. NAGRA Technischer Bericht 85-24, 18 p.

Bucher, F., Jeger, P., Kahr, G. & Lehner, J., 1982. Herstellung & Homogenität hochverdichteter Bentonitproben. NAGRA Technischer Bericht 82-05, 23 p.

Bucher, F. & Spiegel, U., 1984. Quelldruck von hochverdichteten Bentoniten. NAGRA Technischer Bericht 84-18, 53 p.

Deeds, C.T. & Van Olphen, H., 1961. Density studies in clay-liquid systems I. The density of water adsorbed by expanding clays. Advances in Chem. Sep. Am. Chem. Soc. 33:332-339.

Eberl, D.D., 1984. The corrosive nature of sodium bentonite and factors that affect the hydrothermal transformation of smectite into illite. In: Smectite alteration, D.M. Anderson, ed., SKB/KBS Technical Report 84-11, pp. 39 - 40, 166.

Eberl, D. & Hower, J., 1976. Kinetics of illite formation. Geol. Soc. America Bull. 87:1326.

Edelman, C.H. & Favejee, J.C.L., 1940. On the crystal structure of montmorillonite and halloysite. Z. Krist., 102: 417-431.

Eriksen, T., 1981. Ion diffusion through highly compacted bentonite. SKBF/KBS Teknisk Rapport 81-06.

Eriksen, T. & Jacobsson, A., 1981. Ion diffusion in compacted sodium and calcium bentonites. SKBF/KBS Teknisk Rapport 81-12.

Eriksen, T.E. & Jacobsson, A., 1984. Diffusion in clay-experimental techniques and theoretical models. SKBF/KBS Teknisk Rapport.

Ewing, R.C., 1984. Radiation effects. In: Smectite alteration, D.M. Anderson, ed., SKB/KBS Technical Report 84-11, pp. 41-42.

Grauer, R., 1985. Bentonit als Verfüllmaterial im Endlager für hochaktiven Abfall: Chemische Aspekte. NAGRA Technischer Bericht 86-12, 179 p.

Grauer, R., 1986. Ueber mögliche Wechselwirkungen zwischen Verfüllmaterial und Stahlbehälter im Endlger C. NAGRA Interner Bericht 86-01, 21 p.

Grim, R.E., 1968. Clay mineralogy. McGraw-Hill Book Co., New York.

Grim, R.E. & Güven. N., 1978, Bentonites: Geology, mineralogy, properties and uses. Elsevier, Amsterdam.

Hofmann, U., Endell, K. & Wilm, D., 1933. Kristallstruktur und Quellung von Montmorillonit. Z. Krist., 86: 340-348.

Johnston, R.M. & Miller, H.G., 1984. The effect of pH on the stability of smectite. Report AECL-8366, Whiteshell Nuclear Research Establishment, Pinawa, Manitoba, 45 p.

Kahr, G., 1987. Persönliche Mitteilung.

Kahr, G., Hasenpatt, R. & Müller-Vonmoos, M., 1985. Ionendiffusion in hochverdichtetem Bentonit. NAGRA Technischer Bericht 85-23, 29 p.

Kahr, G., Kraehenbuehl, F., Müller-Vonmoos, M. & Stoeckli, H.F., 1986. Wasseraufnahme und Wasserbewegung in hochverdichtetem Bentonit. NAGRA Technischer Bericht 86-14, 40 p.

Kahr, G., & Müller-Vonmoos, M., 1982. Wärmeleitfähigkeit von Bentonit und Montigel nach der Heizdrahtmethode. NAGRA Technischer Bericht 82-06, 19 p.

Karlsson, R., 1981. Consistency limits. Swedish Council for Building Research, Stockholm, 42 p.

Knutsson, S., 1983. On the thermal conductivity and thermal diffusivity of highly compacted bentonite, SKBF/KBS Technical Report 83-72, 43 p.

McBride, M.B. & Bloom, P.R., 1977. Adsorption of aluminium by a smectite II: an Al^{3+} - Ca^{2+} exchange model. Soil Sci. Soc. Amer. J., 41:1073

McKinley, I., 1984. Radionuclide sorption on bentonite backfill, Report AN-45-84-29, EIR, Würenlingen, Schweiz.

Mesri, G. & Olson, R.E., 1971. Mechanisms controlling the permeability of clays. Clays und Clay Minerals, 19:151-158.

Meyer, D. & Howard, J.J. 1983. Evaluation of clays and clay minerals for application to repository sealing. Technical Report ONWI-486, prepared for Office of Nuclear Waste Isolation, Battelle Memorial Institute, Columbus, OH., 180 p.

Müller-Vonmoos, M., 1971. Zur Korngrössenfraktionierung tonreicher Sedimente. Schweiz. Mineralog. Petrogr. Ges., Mitt. 51:245-257.

Müller-Vonmoos, M. & Kahr, G., 1982. Bereitstellung von Bentoniten für Laboruntersuchungen. NAGRA Technischer Bericht 82-04, 14 p.

Müller-Vonmoos, M. & Kahr, G., 1983. Mineralogische Untersuchungen von Wyoming Bentonit MX-80 und Montigel. NAGRA Technischer Bericht 83-12, 28 p.

Müller-Vonmoos, M. & Kahr, G., 1985. Langzeitstabilität von Bentonit unter Endlagerbedingungen. NAGRA Technischer Bericht 85-25, 34 p.

Müller-Vonmoos, M. & Kahr, G., 1986. Vorkommen & Bildung eisenreicher Bentonite. NAGRA Interner Bericht 86-03, 7 p.

Neretnieks, I., 1982. Diffusivities of some dissolved constituents in compacted wet bentonite clay-MX-80 and the impact on radionuclide migration in the buffer. SKBF/KBS Teknisk Rapport 82-27, 23 p.

Pusch, R., 1978. Highly compacted Na bentonite as buffer substance. KBS Teknisk Rapport 74, 42 p.

Pusch, R., 1980a. Water uptake, migration and swelling characteristics of unsaturated and saturated, highly compacted bentonite. SKBF/KBS Teknisk Rapport 80-11, 85 p.

Pusch, R., 1980b. Swelling pressure of highly compacted bentonite. SKBF/KBS Teknisk Rapport 80-13, 30 p.

Pusch, R., 1980c. Permeability of highly compacted bentonite. SKBF/KBS Teknisk Rapport 80-16, 38 p.

Pusch, R., 1981. Borehole sealing with highly compacted Na bentonite. SKBF/KBS Teknisk Rapport 81-09, 51 p.

Pusch, R., 1982. Mineral-water interactions and their influence on the physical behavior of highly compacted Na bentonite. Can. Geotech. J., 19:381-387.

Pusch, R., 1983a. Stability of deep-sited smectite minerals in crystalline rock - Chemical aspects. SKBF/KBS Teknisk Rapport 83-16, 91 p.

Pusch, R., 1983b. Use of clays as buffers in radioactive repositories. SKBF/KBS Teknisk Rapport 83-46, 79 p.

Pusch, R., 1983c. Stress/strain/time properties of highly compacted bentonite. SKBF/KBS Teknisk Rapport 83-47, 55 p.

Pusch, R., 1983d. Stability of bentonite gels in crystalline rock - Physical aspects. SKBF/KBS Teknisk Rapport 83-04, 91 p.

Pusch, R. & Carlsson, T., 1985. The physical state of pore water of Na smectite used as barrier component. Engineering Geology, 21:285-265.

Pusch, R., Eriksen, T.E. & Jacobsson, A., 1982. Ion/water migration phenomena in dense bentonite. Scientific Basis for Radioactive Waste Management V, W. Lutze, ed. Elsevier, pp. 649 - 658.

Pusch, R., Erlström, M. & Börgesson, L., 1985a. Sealing of rock fractures. A survey of potentially useful methods and substances. SKBF/KBS Teknisk Rapport 85-17, 136 p.

Pusch, R., Ranhagen, L. & Nilsson, K., 1985b. Gas migration through MX-80 bentonite. NAGRA Technical Report 85-36, 29 p.

Schneider, T.R. & Kappeler, S.W., 1984. Geowissenschaftliche Grundlagen des Sondier-Standortes Oberbauen Stock, NAGRA Technischer Bericht 84-20, Bd. 1 & 2 190 p + Anh.

Seed, H.B., Woodward, J.R. & Lundgren, R., 1964. Clay mineralogical aspects of the Attenberg limits. J. Soil Mech. Found. Div. ASCE, 90 (SM4): 107-131.

Sposito, G. & Prost, R., 1982. Structure of water adsorbed on smectites. Chemical Reviews, 82(6): 554-573.

Studer, J., Ammann, W., Meier, P., Müller, Ch. & Glauser, E., 1984. Verfüllen und Versiegeln von Stollen, Schächten und Bohrlöchern. NAGRA Technischer Bericht 84-33, Bd. 1 & 2, 222 p + Anhang.

Terzaghi, K. & Peck, R.B., 1967. Soil Mechanics in engineering practice. 2nd ed., Wiley, 729 p.

Torstenfelt, B., Allard, B., Andersson, K., Kipatsi, H., Eliasson, L., Olofsson, U. & Persson, H., 1983. Radionuclide diffusion and mobilities in compacted bentonite. SKBF/KBS Technical Report 83-34, 23 p.

Torstenfelt, B., Kipatsi, H., Andersson, K., Allard, B. & Olofsson, U., 1982. Transport of actinides through a bentonite backfill. Scientific Basis for Radioactive Waste Management V, W. Lutze, ed., Elsevier, pp. 659-668.

Van Olphen, H., 1975. Water in Soils. In: Soil Components, Vol. 2, Gieseking ed., Springer, Berlin.

Weiss, A., 1958. Ueber das Kationenaustauschvermögen der Tonminerale I: Vergleich der Untersuchungsmethoden. Z. anorg. allgem. Chem. 297:232.

Westsik, J.H., Hodges, F.N., Kuhn, W.L. & Myers, T.R., 1983. Water migration through compacted bentonite backfills for containment of high-level nuclear waste. Nuclear and Chemical Waste Management, 4:291-299.