



## Discussion of parameters used to distinguish suitable from less suitable HLRW bentonites

Stephan Kaufhold

BGR, Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe, Stilleweg 2, 30655 Hannover, Germany

**Correspondence:** Stephan Kaufhold (s.kaufhold@bgr.de)

Published: 10 November 2021

**Abstract.** Bentonites will be used in the construction of some high-level radioactive waste (HLRW) repositories mostly in combination with crystalline host rocks. They will be used both as a geotechnical barrier (compacted bentonite blocks) around the canisters and for backfilling. The bentonite should be stable in contact with cement pore water, minimize metal corrosion, be stable against erosion and various salt solutions, retard radionuclides, prevent canister displacement, possess high thermal conductivity, be stable against radioactive radiation, keep its swelling capacity even when dried, and, most importantly, should have a low hydraulic conductivity. Bentonites are natural materials (clays) which are dominated by swelling clay minerals called smectites. All bentonites, therefore, possess high water uptake capacity, swelling, and cation exchange properties. Different bentonites from different deposits worldwide differ with respect to their chemical and mineralogical composition, composition and charge distribution of the smectites, particle size and morphology, microstructure (arrangement of particles relative to each other), and interlayer population. All these parameters affect the performances of bentonites in different applications. The bentonite industry, therefore, compares different bentonites based on empirical investigations to produce superior products. Specifications which could be used to select a suitable HLRW bentonite were discussed by Kaufhold and Dohrmann (2016). Additional information has been published later (Kaufhold et al., 2020a, b). First of all, some of the above listed desired bentonite properties depend more on the degree to which it is compacted compared to the natural variability. High compaction decreases the hydraulic conductivity and increases thermal conductivity. In order to prevent canister displacement only a small swelling pressure is needed which is easily achieved by compaction with all bentonites. Generally, the type of exchangeable cation is the most important parameter determining bentonite properties such as swelling and rheology. Large scale deposition tests, however, proved that the cation population will readily equilibrate with the surrounding water. The initial type of exchangeable cation is, therefore, less relevant. More important is the Fe content which negatively affects the thermal and chemical stability. Structural Fe of the smectites can be reduced or oxidized by bacteria and radiation. The Fe content of the bentonite should therefore be low. Highly charged smectites proved to be less corrosive in combination with iron canisters because they provide more reducing conditions compared to low charged ones. Bentonites containing highly charged smectites should be preferred if Fe canisters are used. In the case of Cu canisters no effect of the charge could be found. Also, soluble or at least partly soluble components such as sulphates, sulphides, carbonates, and organic matter should be absent since their possible dissolution would decrease the dry density and hence the swelling pressure. The presence of reactive silica in some bentonites proved to buffer the dissolution reactions at the cement bentonite interface and hence could have a beneficial effect.

**Kurzfassung.** Bentonite werden beim Bau einiger Endlager für hochradioaktive Abfälle (HAA) verwendet, meist in Kombination mit kristallinem Wirtsgestein. Sie werden sowohl als geotechnische Barriere (verdichtete Bentonitblöcke) um die Behälter als auch zur Verfüllung verwendet. Der Bentonit sollte im Kontakt mit Zementporenwasser stabil sein, die Metallkorrosion minimieren, stabil gegen Erosion und verschiedene Salzlösungen sein, Radionuklide zurückhalten, die Verlagerung von Behältern verhindern, eine hohe Wärmeleitfähigkeit besitzen, Stabilität gegen radioaktive Strahlung besitzen, seine Quellfähigkeit auch im getrockneten Zustand

beibehalten und vor allem eine geringe hydraulische Leitfähigkeit aufweisen. Bentonite sind natürliche Materialien (Tone), in denen quellfähige Tonminerale, sog. Smektite, dominieren. Alle Bentonite verfügen daher über eine hohe Wasseraufnahmekapazität, Quellfähigkeit und Kationenaustauschfähigkeit. Verschiedene Bentonite aus unterschiedlichen Lagerstätten weltweit unterscheiden sich hinsichtlich ihrer chemischen und mineralogischen Zusammensetzung, der Zusammensetzung und Ladungsverteilung der Smektite, der Partikelgröße und -morphologie, der Mikrostruktur (Anordnung der Partikel zueinander) und der Zwischenschichtbelegung. All diese Parameter beeinflussen die Leistung von Bentoniten in verschiedenen Anwendungen. Die Bentonitindustrie vergleicht daher verschiedene Bentonite auf der Grundlage empirischer Untersuchungen, um überlegene Produkte herzustellen. Spezifikationen, die zur Auswahl eines geeigneten HAA-Bentonits verwendet werden können, wurden von Kaufhold und Dohrmann (2016) diskutiert. Weitere Informationen wurden später veröffentlicht (Kaufhold et al., 2020a, b). Zunächst einmal hängen einige der oben aufgeführten gewünschten Bentoniteigenschaften stärker vom Grad der Verdichtung ab als von der natürlichen Variabilität. Eine hohe Verdichtung vermindert die hydraulische Leitfähigkeit und erhöht die Wärmeleitfähigkeit. Um eine Kanisterverschiebung zu verhindern, ist nur ein geringer Quelldruck erforderlich, der bei allen Bentoniten durch Verdichtung leicht erreicht wird. Im Allgemeinen ist der Typ des austauschbaren Kations der wichtigste Parameter, der die Eigenschaften des Bentonits wie Quellung und Rheologie bestimmt. Großangelegte Endlagerversuche haben jedoch gezeigt, dass sich die Kationenpopulation leicht mit dem umgebenden Wasser ausgleicht. Der ursprüngliche Typ des austauschbaren Kations ist daher weniger wichtig. Wichtiger ist der Fe-Gehalt, der sich negativ auf die thermische und chemische Stabilität auswirkt. Das strukturelle Fe der Smektite kann durch Bakterien und Strahlung reduziert oder oxidiert werden. Der Fe-Gehalt des Bentonits sollte daher niedrig sein. Hochgeladene Smektite haben sich in Kombination mit Eisenkanistern als weniger korrosiv erwiesen, da sie im Vergleich zu niedrig geladenen Smektiten mehr reduzierende Bedingungen bieten. Bei der Verwendung von Fe-Kanistern sollten Bentonite mit hochgeladenen Smektiten bevorzugt werden. Hinsichtlich Cu-Behältern konnte kein Einfluss der Ladung festgestellt werden. Auch lösliche oder zumindest teilweise lösliche Bestandteile wie Sulfate, Sulfide, Karbonate und organische Stoffe sollten nicht enthalten sein, da ihre mögliche Auflösung die Trockendichte und damit den Quelldruck verringern würde. Das Vorhandensein von reaktivem Siliziumdioxid in einigen Bentoniten hat sich als Puffer für die Auflösungsreaktionen an der Grenzfläche zwischen Zement und Bentonit erwiesen und könnte sich daher positiv auswirken.

## References

- Kaufhold, S. and Dohrmann, R.: Distinguishing between more and less suitable bentonites for storage of high-level radioactive waste, *Clay Miner.*, 51, 289–302, 2016.
- Kaufhold, S., Dohrmann, R., and Ufer, K.: Determining the extent of bentonite alteration at the bentonite/cement interface, *Appl. Clay Sci.*, 186, 105446, <https://doi.org/10.1016/j.clay.2020.105446>, 2020a.
- Kaufhold, S., Klimke, S., Schlömer, S., Alpermann, T., Renz, F., and Dohrmann, R.: About the corrosion mechanism of metal iron in contact with bentonite, *ACS Earth Space Chem.*, 4, 711–721, <https://doi.org/10.1021/acsearthspacechem.0c00005>, 2020b.