
KBS TEKNISK RAPPORT

53

Mätning av diffusionshastighet för silver i lera-sand-blandning

Bert Allard
Heino Kipatsi

Chalmers tekniska högskola 1977-10-15

MÄTNING AV DIFFUSIONSHASTIGHET FÖR SILVER
I LERA-SAND-BLANDNING

Bert Allard
Heino Kipatsi
Chalmers Tekniska Högskola 1977-10-15

Denna rapport utgör redovisning av ett
arbete som utförts på uppdrag av KBS. Slut-
satser och värderingar i rapporten är för-
fattarens och behöver inte nödvändigtvis
sammanfalla med uppdragsgivarens.

I slutet av rapporten har bifogats en för-
teckning över av KBS hittills publicerade
tekniska rapporter i denna serie.

CHALMERS TEKNISKA HÖGSKOLA



CHALMERS UNIVERSITY OF TECHNOLOGY
GÖTEBORG
SWEDEN

GÖTEBORGS UNIVERSITET



UNIVERSITY OF GOTHENBURG

INSTITUTIONEN FÖR KÄRNKEMI
DEPARTMENT OF NUCLEAR CHEMISTRY

MÄTNING AV DIFFUSIONSHASTIGHET FÖR
SILVER I LERA-SAND-BLANDNING
(Objekt 19:07, KBS)

B Allard, H Kipatsi

Institutionen för kärnkemi
Chalmers tekniska högskola
Fack, 402 20 Göteborg 5

1977-10-15

INNEHÅLLSFÖRTECKNING

1.	INLEDNING	1
2.	DIFFUSIONSPROCESSER	1
2.1.	Ficks lag	1
2.2.	Skenbara diffusionskoefficienten	2
2.3.	Fördelningskoefficienten	2
3.	EXPERIMENTELL TEKNIK	3
3.1.	Diffusionsmätningar	3
3.2.	Fördelningsmätningar	4
4.	MÄTRESULTAT	4
4.1.	Försöksparametrar	4
4.2.	Mätresultat	5
5.	SLUTSATSER	6
6.	REFERENSER	6

1. INLEDNING

Vid en deponering av högaktivt avfall eller utbränt kärnbränsle i berg måste avfallskroppens inkapslingsmaterial väljas så att risken för genombrott genom korrosion etc. minimeras. Ett kapslingsmaterial som har föreslagits är koppar. Kapseln placeras i en lerbädd, som fungerar som buffertzona. Eftersom förvaret är tänkt att ligga under grundvattennivån sker så småningom en vattenmättnad av lerzonen. Vattenströmningen kring kapseln sker förmodligen huvudsakligen utanför denna zon. En utlösning av koppar, troligen som Cu(I) under de rådande betingelserna, måste dock beaktas. Upplösningshastigheten och därmed tiden till kapslingsgenombrott betingas därigenom bland annat av borttransporthastigheten för utlösta Cu(I) -joner. Denna transport är till stor del en diffusionsprocess.

Objekt 19:07 avsåg ursprungligen bestämning av diffusionshastigheten för Cu(I) -joner i lera-sand-blandning under representativa betingelser. Eftersom praktiskt laboratoriearbete med Cu(I) i vattenlösning kräver absolut frånvaro av oxiderade ämnen och då dessutom lämpliga radioaktiva mät nuklider saknas för koppar har istället objektet omformulerats till att avse bestämning av diffusionshastigheten för Ag(I) -joner, vilka bör ha likartade diffusionsegenskaper som Cu(I) .

2. DIFFUSIONSPROCESSER

2.1. Ficks lag

Rena diffusionsprocesser kan beskrivas med Ficks lag :

$$\frac{\partial x}{\partial t} = D \cdot \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} \quad (1)$$

där c = koncentrationen av diffunderande specie
 t = diffusionstiden
 x = diffusionssträckan

Vid diffusion i en lerbädd påverkas dock processen av fördelningsjämvikter i lera-vattensystemet. De flesta katjoner sorberas i lermaterial. Sorptionen är huvudsakligen en jonbytesprocess som kan vara koncentrationsberoende. Diffusionen sker huvudsakligen i vattenfasen

men även till en del i lerfasen. Under de aktuella betingelserna är jonhalterna i vattnet låga och jonbyteskapaciteten hög.¹ En praktiskt sett koncentrationsoberoende fördelningsjämvikt kan förväntas. Transporten i den fasta lerfasen kan försummas eftersom den är betydligt långsammare än transporten i vattenfasen.²

Övriga förutsättningar som krävs för att ekvn (1) skall kunna tillämpas är³

- reversibel sorption
- snabb sorptionsjämvikt relativt hastigheten för koncentrationsändringen i diffusionsriktningen

Generellt kan inte förutsättas att sorptionsjämvikten är reversibel. Vissa processer är av ren jonbyteskaraktär medan andra mekanismer också kan förekomma.

2.2. Skenbara diffusionskoefficienten

I stället för mätning av diffusionskoefficienten D enligt ekvn (1) bestäms ofta den skenbara diffusionskoefficienten D_A definierad enligt⁴

$$D_A = \bar{x}^2 / 2t \quad (2)$$

där \bar{x} = medeldiffusionssträckan.

2.3. Fördelningskoefficienten

Fördelningen av ett ämne A mellan lera och vattenfas kan beskrivas av fördelningskoefficienten K_d enligt

$$K_d = \frac{q_A}{c_A} \quad (3)$$

där q_A = sorberad mängd på fasta fasen vid jämvikt [mol/kg]

c_A = halt i lösning vid jämvikt [mol/m³]

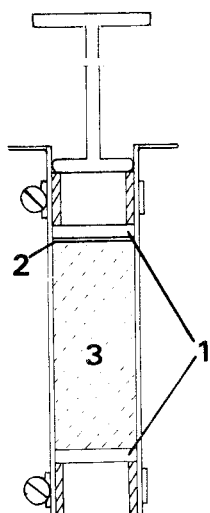
Med kännedom om K_d kan bidraget från sorptionsjämvikten till retentionen av ämnet A uppskattas.

3. EXPERIMENTELL TEKNIK

3.1. Diffusionsmätningar

En tub (längd 50 mm, diameter c:a 15 mm) användes för direktmätning av den skenbara diffusionskoefficienten. Torr lera packades mellan två keramiska silplattor, figur 1. Mellan den övre plattan och lerskiktet hade placerats ett pappersfilter belagd med en svårlöslig, radioaktivt märkt förening av det aktuella jonslaget. I detta fall hade filtret indränkts med AgNO_3 -lösning innehållande $^{110\text{m}}\text{Ag}$ och därefter nedsänkts i NaCl -lösning och torkats. Tuben placerades i en plastflaska fylld till några cm:s höjd med vatten, vilket trängde in genom silfiltret och upptogs i lerskiktet.

Figur 1. Anordning för diffusionsstudier



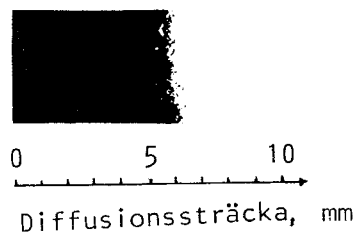
1. Silfilter
2. Pappersfilter belagt med radioaktivt märkt förening (AgCl)
3. Lerkropp (vattenmättad)

I ett förberedande försök hade maximala vattenupptaget bestämts. Efter två dygn innehöll blandningen c:a 22 vikts-% vatten och vattenhalten var därefter konstant. Vattenhalten bör kunna betraktas som konstant under hela diffusionstiden eftersom maximalt vattenupptag skett efter c:a 5 tim.⁵

Diffusionen i lerpelaren kunde följas genom upptag av autoradiogram, figur 2. Då tillräcklig vandringssträcka hade erhållits trycktes den fuktiga lerkroppen ut ur cylindern och snittades successivt i milli-

metertjocka skivor, varefter aktivitetsfördelningen mättes radiometriskt med scintillationsdetektor.

Figur 2. Autoradiogram av aktivitetsfördelningen i lerkroppen efter 30 dygns diffusionstid



3.2. Fördelningsmätningar

Fördelningskoefficienten för Ag(I) bestämdes genom skakförsök.¹

4. MÄTRESULTAT

4.1. Försöksparametrar

Följande försöksbetingelser gällde:

Fast fas: Blandning av montmorillonit (vol-clay, 10 vikts-% och kvartskross (0,02 - 0,06 mm; 90 vikts-%)

Vattensammansättning:¹ a. Salthalt 1105 mg/l (Aq₁₁₀₅)
b. Salthalt 293 mg/l (Aq₂₉₃)
(Sammansättningen ges i tabell 1)

Tabell 1. Vattensammansättningen

Jon	Halter			
	Aq ₁₁₀₅		Aq ₂₉₃	
	mg/l	mM	mg/l	mM
Na	288	12,53	42	1,83
K	10	0,26	5	0,13
Mg	15	0,62	7,5	0,31
Ca	75	1,87	37,5	0,94
Cl	500	14,10	93	2,62
F	1,5	0,08	0,75	0,04
SO ₄	15	0,16	7,5	0,08
HCO ₃	200	3,28	100	1,64
Tot	1105	35,54 ¹⁾	293	8,92 ¹⁾

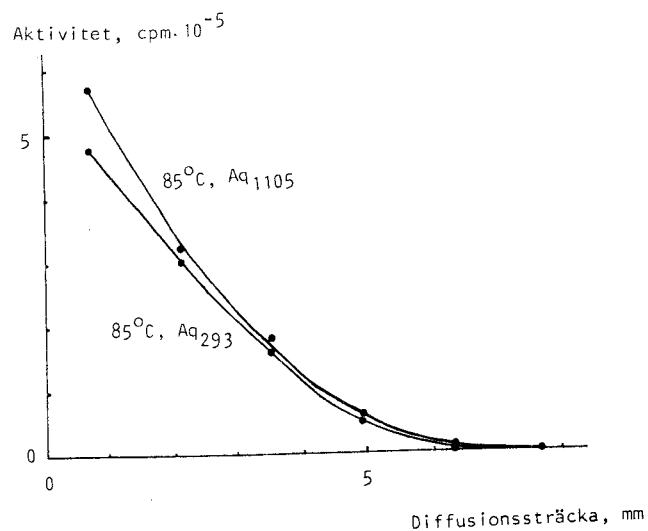
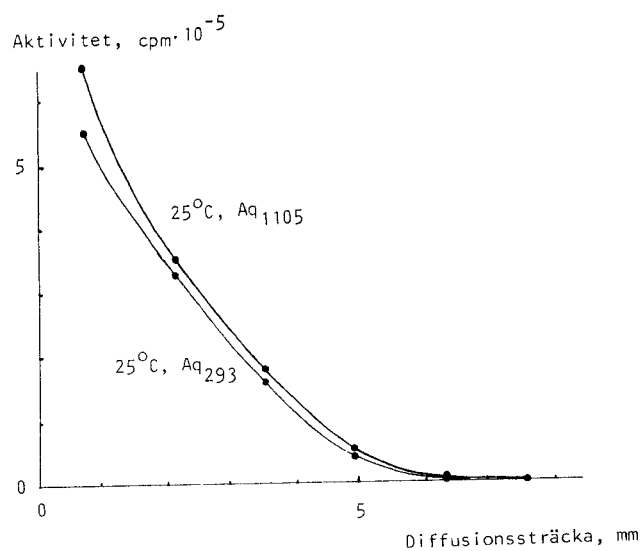
1) mekv/l

Mätisotop: ^{110m}Ag (Halveringstid: 253 dygn)
Temperatur: a. 25°C
b. 85°C
Diffusionstid: 30 dygn eller mera

4.2. Mätresultat

Uppmätta aktivitetsfördelningar och vandringssträckor ges i figur 3 för några representativa försök.

Figur 3. Diffusion av Ag(I) i kvarts/montmorillonit.



Diffusionskoefficienter beräknade enligt ekv.(2) ges i tabell 2.

Tabell 2. Uppmätta diffusionskoefficienter (m^2/s)

	Temp., °C	
	25	85
Aq ₁₁₀₅	$7 \cdot 10^{-13}$	$8 \cdot 10^{-13}$
Aq ₂₉₃	$6 \cdot 10^{-13}$	$7 \cdot 10^{-13}$

För Ag(I) uppmättes fördelningskoefficienten $K_d = 65 \cdot 10^{-3} m^3/kg$ (vid 25°C, Ag₁₁₀₅; kvarts-montmorillonitblandning).

5. SLUTSATSER

Uppmätta diffusionskoefficienter överensstämmer väl med i litteraturen angivna värden för likartade system, om hänsyn tas till retentionen i leran (definierad av K_d -värdet).

Diffusionskoefficienten ökar med ökad temperatur och med ökad salt-halt i vattnet. Skillnaderna i diffusionshastighet mellan 25°C och 85°C liksom mellan höghalts- och låghaltsvattnet är dock obetydliga och i sammanhanget praktiskt betydelselösa.

6. REFERENSER

1. B.Allard, H.Kipatsi, J.Rydberg, "Sorptions av långlivade radionuklider i leror och berg. Del I". KBS Teknisk Rapport, under tryckning.
2. I.Neretnieks, "Retardation of escaping nuclides from a final depository". Final report on the KBS-object 21.05 Stockholm 1977, s.36.
3. V.M.Prokhorov, "Ion diffusion in soil and its role in radionuclide migration", i V.M.Klechkovski, G.G.Polikarpov, R.M.Aleksahin (red.), "Radioecology", John Wiley & Sons, New York och Israel Program for Scientific Translations, Jerusalem, London 1971, s.103.

4. L.L.Ames JR, "Self diffusion of some cations in open zeolites",
The American Mineralogist 50 (1965) 465.
5. A.Jacobsson,R.Puch. "Deponering av högaktivt avfall i borrhål
med buffertsubstans", KBS Teknisk Rapport 03, Stockholm 1977.

FÖRTECKNING ÖVER KBS TEKNISKA RAPPORTER

- 01 Källstyrkor i utbränt bränsle och högaktivt avfall från en PWR beräknade med ORIGEN
Nils Kjellbert
AB Atomenergi 77-04-05
- 02 PM angående värmeledningstal hos jordmaterial
Sven Knutsson
Roland Pusch
Högskolan i Luleå 77-04-15
- 03 Deponering av högaktivt avfall i borrhål med buffertsubstans
Arvid Jacobsson
Roland Pusch
Högskolan i Luleå 77-05-27
- 04 Deponering av högaktivt avfall i tunnlar med buffertsubstans
Arvid Jacobsson
Roland Pusch
Högskolan i Luleå 77-06-01
- 05 Orienterande temperaturberäkningar för slutförvaring i berg av radioaktivt avfall, Rapport 1
Roland Blomqvist
AB Atomenergi 77-03-17
- 06 Groundwater movements around a repository, Phase 1, State of the art and detailed study plan
Ulf Lindblom
Hagconsult AB 77-02-28
- 07 Resteffekt studier för KBS
Del 1 Litteraturgenomgång
Del 2 Beräkningar
Kim Ekberg
Nils Kjellbert
Göran Olsson
AB Atomenergi 77-04-19
- 08 Utlakning av franskt, engelskt och kanadensiskt glas med högaktivt avfall
Göran Blomqvist
AB Atomenergi 77-05-20

- 09 Diffusion of soluble materials in a fluid filling a porous medium
Hans Häggblom
AB Atomenergi 77-03-24
- 10 Translation and development of the BNWL-Geosphere Model
Bertil Grundfelt
Kemakta Konsult AB 77-02-05
- 11 Utredning rörande titans lämplighet som korrosionshärdig kapsling för kärnbränsleavfall
Sture Henriksson
AB Atomenergi 77-04-18
- 12 Bedömning av egenskaper och funktion hos betong i samband med slutlig förvaring av kärnbränsleavfall i berg
Sven G Bergström
Göran Fagerlund
Lars Rombén
Cement- och Betonginstitutet 77-06-22
- 13 Urlakning av använt kärnbränsle (bestrålad uranoxid) vid direktdeponering
Ragnar Gelin
AB Atomenergi 77-06-08
- 14 Influence of cementation on the deformation properties of bentonite/quartz buffer substance
Roland Pusch
Högskolan i Luleå 77-06-20
- 15 Orienterande temperaturberäkningar för slutförvaring i berg av radioaktivt avfall
Rapport 2
Roland Blomquist
AB Atomenergi 77-05-17
- 16 Översikt av utländska riskanalyser samt planer och projekt rörande slutförvaring
Åke Hultgren
AB Atomenergi augusti 1977
- 17 The gravity field in Fennoscandia and postglacial crustal movements
Arne Bjerhammar
Stockholm augusti 1977
- 18 Rörelser och instabilitet i den svenska berggrunden
Nils-Axel Mörner
Stockholms Universitet augusti 1977
- 19 Studier av neotektonisk aktivitet i mellersta och norra Sverige, flygbildsgenomgång och geofysisk tolkning av recenta förkastningar
Robert Lagerbäck
Herbert Henkel
Sveriges Geologiska Undersökning september 1977

- 20 Tektonisk analys av södra Sverige, Vättern - Norra Skåne
Kennert Röshoff
Erik Lagerlund
Lunds Universitet och Högskolan Luleå september 1977
- 21 Earthquakes of Sweden 1891 - 1957, 1963 - 1972
Ota Kulhánek
Rutger Wahlström
Uppsala Universitet september 1977
- 22 The influence of rock movement on the stress/strain situation in tunnels or bore holes with radioactive constituents embedded in a bentonite/quartz buffer mass
Roland Pusch
Högskolan i Luleå 1977-08-22
- 23 Water uptake in a bentonite buffer mass
A model study
Roland Pusch
Högskolan i Luleå 1977-08-22
- 24 Beräkning av utlakning av vissa fissionsprodukter och aktinider från en cylinder av franskt glas
Göran Blomqvist
AB Atomenergi 1977-07-27
- 25 Blekinge kustgnejs, Geologi och hydrogeologi
Ingemar Larsson KTH
Tom Lundgren SGI
Ulf Wiklander SGU
Stockholm, augusti 1977
- 26 Bedömning av risken för fördröjt brott i titan
Kjell Pettersson
AB Atomenergi 1977-08-25
- 27 A short review of the formation, stability and cementing properties of natural zeolites
Arvid Jacobsson
Högskolan i Luleå 1977-10-03
- 28 Värmeledningsförsök på buffertsubstans av bentonit/pitesilt
Sven Knutsson
Högskolan i Luleå 1977-09-20
- 29 Deformationer i sprickigt berg
Ove Stephansson
Högskolan i Luleå 1977-09-28
- 30 Retardation of escaping nuclides from a final depository
Ivars Neretnieks
Kungliga Tekniska Högskolan Stockholm 1977-09-14
- 31 Bedömning av korrosionsbeständigheten hos material avsedda för kapsling av kärnbränsleavfall. Lägesrapport 1977-09-27 samt kompletterande yttranden.
Korrosionsinstitutet och dess referensgrupp

- 32 Long term mineralogical properties of bentonite/quartz
buffer substance
Preliminär rapport november 1977
Slutrapport februari 1978
Roland Pusch
Arvid Jacobsson
Högskolan i Luleå
- 33 Required physical and mechanical properties of buffer masses
Roland Pusch
Högskolan Luleå 1977-10-19
- 34 Tillverkning av bly-titan kapsel
Folke Sandelin AB
VBB
ASEA-Kabel
Institutet för metallforskning
Stockholm november 1977
- 35 Project for the handling and storage of vitrified high-level
waste
Saint Gobain Techniques Nouvelles October, 1977
- 36 Sammansättning av grundvatten på större djup i granitisk
berggrund
Jan Rennerfelt
Orrje & Co, Stockholm 1977-11-07
- 37 Hantering av buffertmaterial av bentonit och kvarts
Hans Fagerström, VBB
Björn Lundahl, Stabilator
Stockholm oktober 1977
- 38 Utformning av bergrumsanläggningar
Arne Finné, KBS
Alf Engelbrektson, VBB
Stockholm december 1977
- 39 Konstruktionsstudier, direktdeponering
ASEA-ATOM
VBB
Västerås
- 40 Ekologisk transport och stråldoser från grundvattenburna
radioaktiva ämnen
Ronny Bergman
Ulla Bergström
Sverker Evans
AB Atomenergi
- 41 Säkerhet och strålskydd inom kärnkraftområdet.
Lagar, normer och bedömningsgrunder
Christina Gyllander
Siegfried F Johnson
Stig Rolandson
AB Atomenergi och ASEA-ATOM

- 42 Säkerhet vid hantering, lagring och transport av använt kärnbränsle och förglasat högaktivt avfall
Ann Margret Ericsson
Kemakta november 1977
- 43 Transport av radioaktiva ämnen med grundvatten från ett bergförvar
Bertil Grundfelt
Kemakta november 1977
- 44 Beständighet hos borsilikatglas
Tibor Lakatos
Glasteknisk Utveckling AB
- 45 Beräkning av temperaturer i ett envånings slutförvar i berg för förglasat radioaktivt avfall Rapport 3
Roland Blomquist
AB Atomenergi 1977-10-19
- 46 Temperaturberäkningar för använt bränsle
Taivo Tarandi
VBB
- 47 Teoretiska studier av grundvattenrörelser
Preliminär rapport oktober 1977
Slutrapport februari 1978
Lars Y Nilsson
John Stokes
Roger Thunvik
Inst för kulturteknik KTH
- 48 The mechanical properties of the rocks in Stripa, Kråkemåla, Finnsjön and Blekinge
Graham Swan
Högskolan i Luleå 1977-09-14
- 49 Bergspänningsmätningar i Stripa gruva
Hans Carlsson
Högskolan i Luleå 1977-08-29
- 50 Lakningsförsök med högaktivt franskt glas i Studsvik
Göran Blomqvist
AB Atomenergi november 1977
- 51 Seismotectonic risk modelling for nuclear waste disposal in the Swedish bedrock
F Ringdal
H Gjöystdal
E S Hysebye
Royal Norwegian Council for scientific and industrial research
- 52 Calculations of nuclide migration in rock and porous media, penetrated by water
H Häggblom
AB Atomenergi 1977-09-14

- 53 Mätning av diffusionshastighet för silver i lera-sand-blandning
Bert Allard
Heino Kipatsi
Chalmers tekniska högskola 1977-10-15
- 54 Groundwater movements around a repository
- 54:01 Geological and geotechnical conditions
Håkan Stille
Anthony Burgess
Ulf E Lindblom
Hagconsult AB september 1977
- 54:02 Thermal analyses
Part 1 Conduction heat transfer
Part 2 Advective heat transfer
Joe L Ratigan
Hagconsult AB september 1977
- 54:03 Regional groundwater flow analyses
Part 1 Initial conditions
Part 2 Long term residual conditions
Anthony Burgess
Hagconsult AB oktober 1977
- 54:04 Rock mechanics analyses
Joe L Ratigan
Hagconsult AB september 1977
- 54:05 Repository domain groundwater flow analyses
Part 1 Permeability perturbations
Part 2 Inflow to repository
Part 3 Thermally induced flow
Joe L Ratigan
Anthony S Burgess
Edward L Skiba
Robin Charlwood
- 54:06 Final report
Ulf Lindblom et al
Hagconsult AB oktober 1977
- 55 Sorption av långlivade radionuklider i lera och berg
Del 1 Bestämning av fördelningskoefficienter
Del 2 Litteraturgenomgång
Bert Allard
Heino Kipatsi
Jan Rydberg
Chalmers tekniska högskola 1977-10-10
- 56 Radiolys av utfyllnadsmaterial
Bert Allard
Heino Kipatsi
Jan Rydberg
Chalmers tekniska högskola 1977-10-15

- 57 Stråldoser vid haveri under sjötransport av kärnbränsle
Anders Appelgren
Ulla Bergström
Lennart Devell
AB Atomenergi
- 58 Strålrisker och högsta tillåtliga stråldoser för människan
Gunnar Walinder
FOA 4 november 1977
- 59 Tectonic lineaments in the Baltic from Gävle to Simrishamn
Tom Flodén
Stockholms Universitet 1977-12-15