Veden kulkeutumisen ja muodonmuutosten mittaaminen MX-80-tyyppisessä bentoniitissa röntgenmikrotomografisin menetelmin

Pro gradu -tutkielma, 13.11.2015

Tekijä:

Joni Lämsä

Ohjaaja:

Markku Kataja

JYVÄSKYLÄN YLIOPISTO
FYSIIKAN LAITOS

TIIVISTELMÄ

Lämsä, Joni
Veden kulkeutumisen ja muodonmuutosten mittaaminen MX-80-tyyppisessä bentoniitissa röntgenmikrotomografisin menetelmin
Pro gradu -tutkielma
Fysiikan laitos, Jyväskylän yliopisto, 2015, 52 sivua

Tämän työn tavoitteena oli selvittää, millä reunaehdoilla aiemmin puhdistetulle bentoniitille kehitetyt kokeelliset menetelmät soveltuvat mikro- ja makrorakenteeltaan erilaisen MX-80-tyyppisen bentoniitin tutkimiseen. Edellä saatujen reunaehtojen rajoissa tehtävien mittausten avulla pyrittiin tutkimaan veden kulkeutumista ja siitä aiheutuvia muodonmuutoksia MX-80-tyyppisessä bentoniitissa. Tavoitteena oli myös, että saatua kokeellista dataa voidaan käyttää apuna laadittaessa MX-80-tyyppisen bentoniitin käyttäytymistä kuvaavia numeerisia malleja.

Veden kulkeutumisen ja muodonmuutosten tutkiminen MX-80:ssa perustui röntgenmikrotomografiaan. Röntgentomografiassa pyritään rekonstruoimaan tutkittavan näytteen vaimenemiskertoimesta kolmiulotteinen malli kaksiulotteisia röntgen- eli projektiokuvia apuna käyttäen. Tämän menetelmän toimivuus perustuu siihen, että MX-80-näytteen kastuessa sen tiheys – ja siten vaimenemiskertoimen arvo – alkaa lokaalisti muuttua. Röntgentomografialaitteiston ottamissa projektiokuvissa tämä näkyy kuvien harmaasävyarvojen muuttumisena. Näytteessä tapahtuvia muodonmuutoksia voidaan määrittää tutkimalla MX-80:ssa olevien inerttien partikkeleiden paikan muutoksia kuivan ja deformoituneen näytteen rekonstruktioiden välillä.

Kaiken kaikkiaan mittaussarjoja tehtiin kolmelle eri MX-80-näytteelle, joiden kuivatiheys oli $1{,}6\,\mathrm{g/cm^3}$. Ensimmäinen röntgenmikrotomografialaitteistolla tehtävä mittaus eli skannaus suoritettiin ennen kastelun aloittamista. Kastelun aloittamisen jälkeen näyte skannattiin yhdeksän kertaa; viimeinen skannaus tehtiin 14 vuorokautta kastelun aloittamisesta. Näytteeseen imeytyneen veden määrä eri ajanhetkillä saatiin selville punnitsemalla näyte skannausten yhteydessä. Kyllästyneessä tilassa MX-80-näytteiden tiheys oli noin $2{,}16\,\mathrm{g/cm^3}$. Kokeelliset tulokset analysoitiin numeerisesti MATLAB-ohjelmistoa apuna käyttäen.

Saatujen tulosten perusteella puhdistetulle bentoniitille kehitetyt kokeelliset menetelmät soveltuvat lähes sellaisenaan myös rakeisemman MX-80-tyyppisen bentoniitin tutkimiseen. Lisäksi eri näytteille saadut tulokset ovat hyvin lähellä toisiaan, minkä perusteella käytetyn menetelmän voidaan arvioida toimivan veden kulkeutumisen ja muodonmuutosten mittaamiseen bentoniitissa. Referenssitulosten ja -menetelmien puutteesta johtuen tulosten epävarmuuden kvantitatiivinen analysointi on kuitenkin haastavaa.

Avainsanat: bentoniitti, tomografia, maaperäfysiikka

ABSTRACT

Lämsä, Joni
Measuring Water Transport and Deformations in MX-80-bentonite with X-ray Micro Tomography
Master's thesis
Department of Physics, University of Jyväskylä, 2015, 52 pages.

The main objective of this thesis was to study when the experimental methods developed for the refined bentonite can be used when studying MX-80-bentonite which has different micro- and macrostructure compared to the refined bentonite. By using these boundary conditions the other purpose of this work was to measure water transport and deformations in MX-80-bentonite. The third objective of this thesis was then to get experimental data for developing numerical models of MX-80-bentonite.

Studying water transport and deformations in MX-80-bentonite was based on the X-ray micro tomography. The purpose of X-ray tomography is to reconstruct three dimensional model of the linear attenuation coefficient of the object by using two dimensional radiographs. This is possible because when absorbing water both the density and the linear attenuation coefficient of MX-80-sample is locally changed. This can be seen by increasing grayscale values of the radiographs. Because there are also inert particles in MX-80-bentonite it is possible to calculate deformations of samples by comparing locations of these particles in reference reconstruction and in deformed reconstruction.

All in all there were three MX-80-samples with dry density $1{,}6\,\mathrm{g/cm^3}$. The first measurement was done before wetting was started. After the wetting was started the sample was scanned nine times so that the last scanning was 14 days after the beginning of wetting. The amount of absorbed water was determined by weighting the sample before and after scanning. When the sample was saturated its density was about $2{,}16\,\mathrm{g/cm^3}$. After that the data was analyzed numerically by using MATLAB.

It turned out X-ray micro tomography methods developed for the refined bentonite can be used almost unchanged also for MX-80-bentonite. Furthermore, the results for three different samples were so similar that it can be estimated the methods used in this thesis were valid. Nevertheless, the lack of reference results and methods makes the quantitative analysis of uncertainty of results challenging.

Keywords: bentonite, tomography, soil physics

ESIPUHE

Kiitos professori Markku Katajalle kaikesta avusta ja ohjauksesta, jota olen saanut niin tämän tutkielman kuin erikoistyönkin tekemiseen. Kiitos lisäksi työn toiselle tarkastajalle, FT Taneli Kalvakselle. Suuri kiitos myös FM Tero Harjupatanalle, joka on ollut aina valmiina auttamaan olipa kyse sitten työhön liittyvien mittausten käytännönjärjestelyistä tai muista työn edetessä vastaan tulleista ongelmatilanteista.

Lopuksi haluan muistuttaa perhettäni ja ystäviäni siitä, kuinka tärkeää läsnäolonne ja tukenne on läpi opintojeni ollut – merkitystänne elämässäni eivät sanat riitä kuvailemaan.

Jyväskylässä 13.11.2015

Joni Lämsä

SISÄLTÖ

1 Johdanto **1**

2 Bentoniitin rakenne ja ominaisuudet **2**
2.1 Bentoniitilta vaadittavat ominaisuudet 4
2.2 Montmorilloniitin mikrorakenne 5
2.3 Veden kulkeutumismekanismit huokoisessa aineessa 6
2.3.1 Konvektiivinen kulkeutuminen 6
2.3.2 Diffundoituminen 9

3 Röntgentomografia materiaalitutkimuksessa **13**
3.1 Röntgensäteily ja sen käyttäminen 13
3.2 Röntgenmikrotomografia 14
3.3 Röntgensäteilyn vaimeneminen ja Lambert-Beerin laki 16
3.4 Röntgenkuvien rekonstruointi 17
3.4.1 Rekonstruointimenetelmiä 17
3.4.2 Rekonstruoinnin artefakteja 20
3.4.3 Dynaaminen taustakuvakorjaus 23

4 Kokeelliset menetelmät **25**
4.1 Mittausten kulku 25
4.2 Kalibrointimittaukset 30
4.3 Näytteen muodonmuutoskentän määrittäminen 31
4.4 Näytteen vesipitoisuuden määrittäminen 33

5 Työn tulokset **36**
5.1 Veden imeytyminen 36
5.2 Muodonmuutokset 38
5.3 Kosteuspitoisuudet 39
5.4 Voima-anturimittaukset 39

6 Johtopäätökset **43**

Lähteet **45**

A Liitteet **48**

1 JOHDANTO

Käytetyn ydinpolttoaineen loppusijoituksessa on suunniteltu käytettäväksi bentoniittipuskuria, joten bentoniitin käyttäytymistä kallioperässä on kyettävä mallintamaan jopa satojentuhansien vuosien päähän. Niin Suomessa kuin ulkomaillakin on toteutettu useita projekteja, joiden tavoitteena on ollut tutkia bentoniitin ominaisuuksia niin ydinpolttoaineen loppusijoituksen kuin muidenkin bentoniitin käyttökohteiden näkökulmasta.

Suomessa ydinjätehuoltoa ohjaavat 1980-luvun lopussa voimaan astuneet ydinenergialaki ja ydinenergia-asetus [23]. Ydinjätehuoltoon liittyviä kysymyksiä on pohdittu esimerkiksi Kansallisessa ydinjätehuollon tutkimusohjelmassa (KYT), jossa mukana ovat olleet muun muassa Posiva Oy, Säteilyturvakeskus (STUK) ja Valtion teknillinen tutkimuskeskus (VTT). Myös Jyväskylän yliopisto on ollut mukana eri projekteissa, joiden tavoitteena on ollut esimerkiksi röntgenmikrotomografisin menetelmin selvittää bentoniitin ominaisuuksia. Bentoniitin käyttäytymistä voidaankin tutkia hydraulisten, kemiallisten, termisten, mekaanisten ja (mikro)biologisten prosessien kautta. Kokeellisesta tutkimuksesta saatujen tulosten ja niistä laadittujen mallien avulla bentoniitin käyttäytymisestä kallioperässä voidaan laatia ennusteita.

Sekä Suomessa että Ruotsissa ydinjätteen loppusijoittaminen perustuu niin sanottuun moniesteperiaatteeseen, johon kuuluu loppusijoituskapseli, loppusijoitustunneleiden täyteaine, kapseleita ympäröivä kallio ja bentoniittipuskuri. Näin ollen bentoniitin ominaisuuksien tunteminen on tärkeää, jotta käytetyn ydinpolttoaineen loppusijoittaminen olisi turvallista. Kun ydinjäte sijoitetaan kuparikapseleissa kallioperään noin 400 metrin syvyyteen, on bentoniitin tehtävänä ensinnäkin suojella kapselia mahdollisista vaurioilta. Toisaalta bentoniitin on mahdollisen vaurion tapahduttua rajoitettava radioaktiivisten ydinten kulkeutumista kallioperässä. [1]

Aiemmin Jyväskylässä on tutkittu puhdistettua bentoniittia, joka on raekooltaan hienojakoisempaa kuin tässä työssä tutkittava MX-80. MX-80-tuotenimellä valmistettu bentoniitti viittaa yleisesti natriummuotoiseen Wyomingin alueelta tulevaan paisuvahilaiseen mineraaliin. Tämän työn tavoitteena on selvittää, millä reunaehdoilla puhdistetun bentoniitin tutkimista varten kehitetyt kokeelliset menetelmät soveltuvat myös rakeisemman MX-80-tyyppisen bentoniitin tutkimiseen. Tästä saatuja reunaehtoja noudattamalla tavoitteena on lisäksi selvittää MX-80-tyyppisessä bentoniittimateriaalissa veden kulkeutumista ja bentoniitissa tapahtuvia muodonmuutoksia röntgenmikrotomografisin menetelmin. Pyrkimyksenä on, että näin saatuja tuloksia voidaan käyttää apuna laadittaessa bentoniitin pitkän aikavälin käyttäytymistä kuvaavia malleja.

Tämän työn luvussa 2 tutustutaan bentoniitin rakenteeseen ja ominaisuuksiin. Luvussa 3 esitellään lyhyesti röntgensäteilyn käyttökohteita ja perehdytään tarkemmin röntgenmikrotomografiaan sekä tässä työssä käytettävään laitteistoon. Työn kokeelliset menetelmät käydään läpi luvussa 4, ja kokeista saatuja tuloksia esitellään luvussa 5. Saatuja tuloksia analysoidaan ja työn tavoitteen toteutumista pohditaan luvussa 6.

2 BENTONIITIN RAKENNE JA OMINAISUUDET

Bentoniittia muodostuu yleensä vulkaanisen tuhkan sedimentoituessa ja riippuen vulkaanisen aineksen alkuperästä, voi bentoniitin kemiallinen koostumus vaihdella. Bentoniitin päämineraali on kuitenkin montmorilloniitti, joka kuuluu paisuvahilaisten mineraalien ryhmään. Montmorilloniitin mikrorakenteeseen ja ominaisuuksiin perehdytään luvussa 2.2. Jos bentoniittia ei ole puhdistettu, se sisältää myös erilaisia sivumineraaleja, joista suuri osa on raekooltaan jopa tuhat kertaa montmorilloniittirakeita suurempia silikaattimineraaleja kuten kvartsia. Kuvasta 1 nähdään ero puhdistetun bentoniitin ja tässä työssä tutkittavan MX-80-tyyppisen bentoniitin raekoon välillä: puhdistetun bentoniitin raekoko on huomattavasti pienempi kuin MX-80:lla. MX-80-tyyppisen bentoniitin koostumus valittujen mineraalien osalta on esitettynä taulukossa 1.

Kuva 1: Vasemmalla MX-80-tyyppistä bentoniittia ja oikealla puhdistettua bentoniittia.

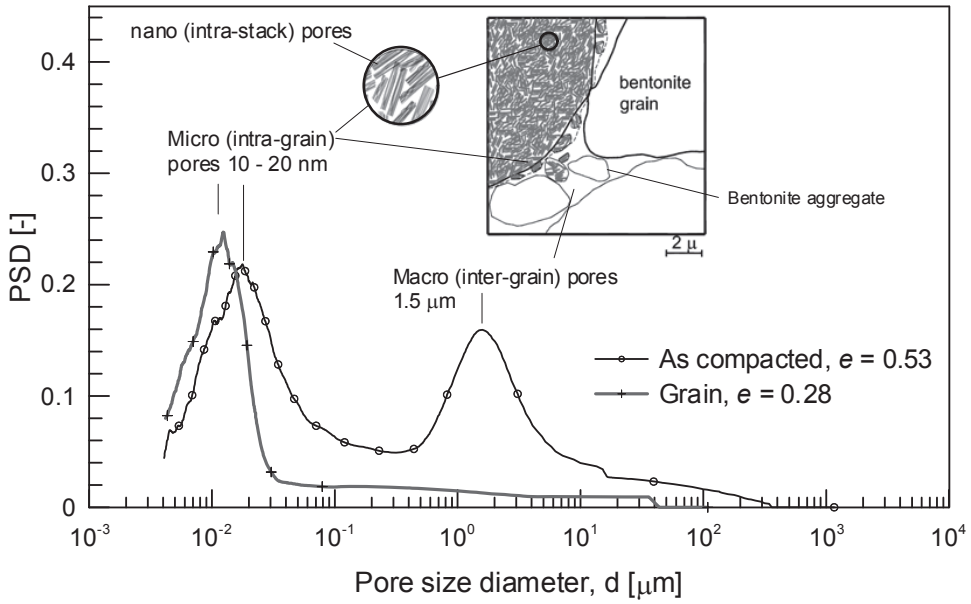
Bentoniitin ominaistiheys on noin 2,75 g/cm^3. Koska tässä työssä tutkittavien MX-80-näytteiden kuivatiheys on noin 1,6 g/cm^3, tyhjän tilan osuus bentoniittinäytteissä on yli 40 %. Osa bentoniitissa olevasta tyhjästä tilasta eli huokosista sisältää vesihöyryä. MX-80-tyyppisen bentoniitin huokoskokojakauma (yhtälö (1)) on esitettynä kuvassa 2. Huokoskokojakauman tunteminen on tärkeää, koska sen avulla voidaan muun muassa ennustaa kolloidien mahdollista kulkeutumista bentoniitissa [14], [18]. Erityisen tarpeellista on vedellä kyllästetyn bentoniitin mikrorakenteen tutkiminen, koska huokosten koko riippuu olennaisesti bentoniittiin absorboituneen veden määrästä, mikä nähdään esimerkiksi kuvasta 3.

Koska käytetyn ydinpolttoaineen loppusijoituksen turvallisuuden arviointi riippuu olennaisesti kuparikapselia suojaavasta bentoniittipuskurista, on bentoniitin käyttäytymisen

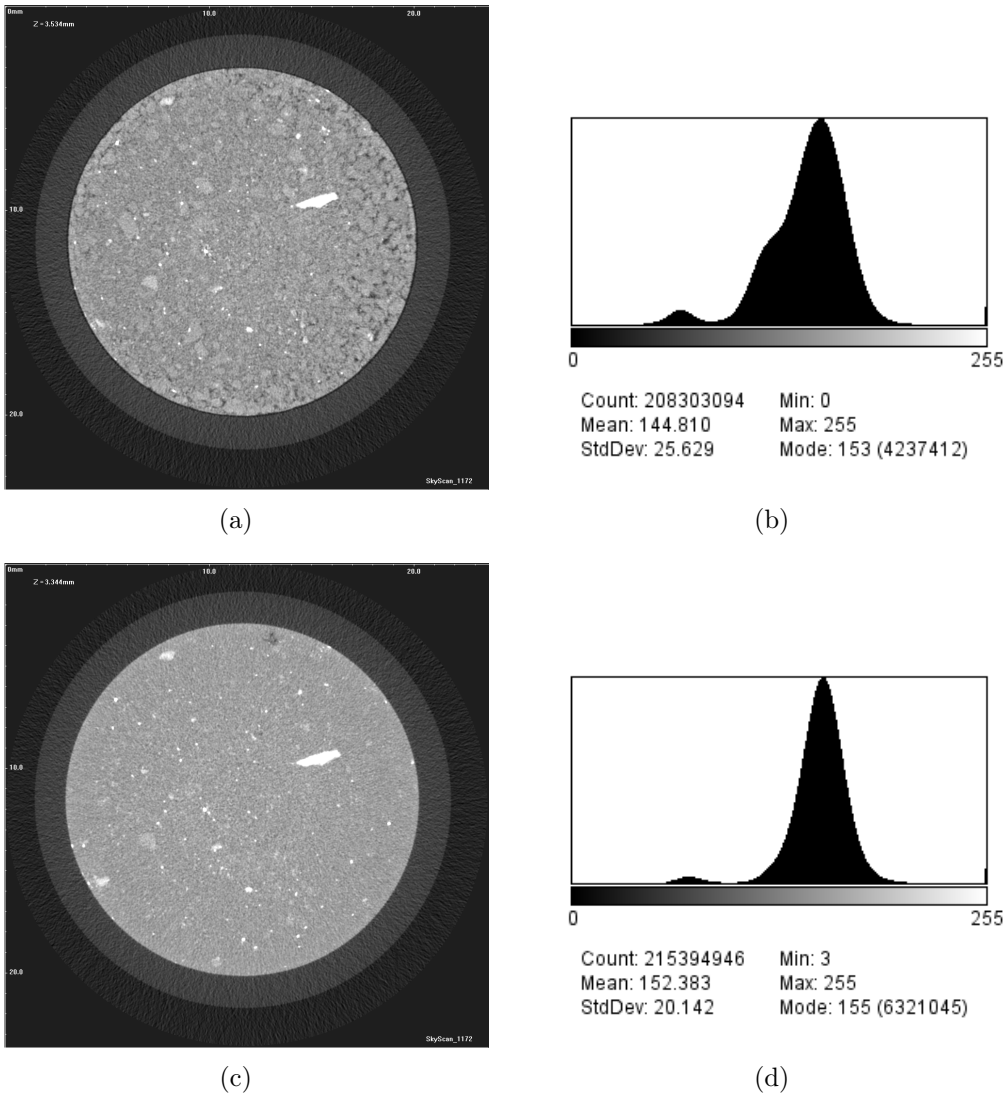
ymmärtäminen tärkeää. Bentoniittipuskuri voi toimia myös radioaktiivisen aineen ja säteilyn kulkeutumista rajoittavana tekijänä kuparikapselin mahdollisen vaurion tapahduttua. [22] Bentoniittia onkin tutkittu muun muassa läpäisyelektronimikroskoopilla (TEM) ja pyyhkäisyelektronimikroskoopilla (SEM) [18], [32]. Tässä työssä bentoniittia tutkitaan röntgenmikrotomografisin menetelmin, jolloin bentoniitin sisärakenteesta saadaan tietoa hajottamatta näytettä. Toisaalta jos näytteiden rakennetta halutaan tutkia mikroskooppisin menetelmin, vaatii näytteiden valmistelu toimenpiteitä, jotka jo itsessään voivat vaikuttaa bentoniitin mikrorakenteeseen.

Taulukko 1: MX-80-tyyppisen bentoniitin koostumus [25].

Mineraali	MX-80 (painoprosenttiosuus)	
Montmorilloniitti	87 %	
	Montmorilloniitin kationit (M)	
	Natrium (Na^+)	72 %
	Kalsium (Ca^{2+})	18 %
	Magnesium (Mg^{2+})	8 %
	Kalium (K^+)	2 %
Kiille (mica)	4 %	
Albiitti	3 %	
Kvartsi	3 %	
Kristobaliitti	2 %	
Muut mineraalit	n. 1 %	



Kuva 2: MX-80-tyyppisessä bentoniitissa olevien huokosten kokojakauma eri huokoisuuden e arvoilla [27]. Samankaltaisia tuloksia on saatu myös muualla, ks. esim. [5].



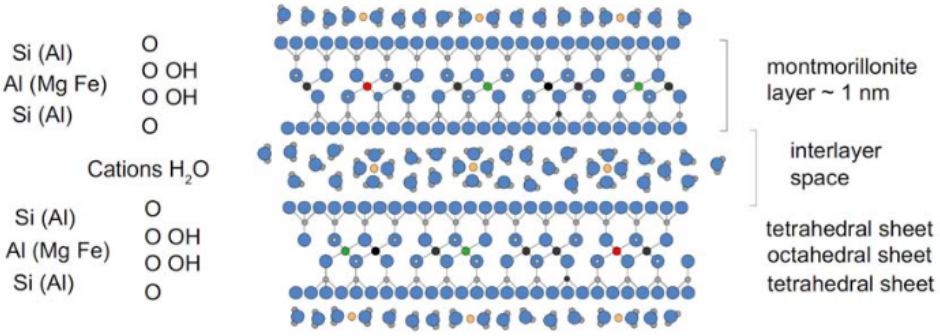
(a) (b)

(c) (d)

Kuva 3: Poikkileikkaus MX-80-näytteen rekonstruktiosta ennen kastelun aloittamista (a) ja kyseistä näytettä vastaava histogrammi harmaasävyjen jakaumasta (b). Vastaava rekonstruktio on tehty seitsemän vuorokautta kastelun aloittamisen jälkeen (c), ja tätä vastaava histogrammi on kuvassa (d).

2.1 Bentoniitilta vaadittavat ominaisuudet

Posiva Oy on ydinjätehuoltoon liittyvissä selvityksissään määrittänyt useita bentoniitilta vaadittavia ominaisuuksia [23]. Ensinnäkin montmorilloniitin osuus loppusijoituksessa käytettävässä bentoniitissa on oltava vähintään 75 %. Taulukon 1 perusteella tämä toteutuu MX-80-tyyppisellä bentoniitilla. Toiseksi ehdoksi on asetettu, että täysin kyllästyneen bentoniitin tiheys on $1{,}95\,\mathrm{g/cm^3} < \rho < 2{,}05\,\mathrm{g/cm^3}$. Tämän työn kastelukokeissa käytettyjen bentoniittinäytteiden kuivatiheys $\rho_{\mathrm{b0}} \approx 1{,}6\,\mathrm{g/cm^3}$, ja näytteiden kosteusprosentti kyllästettynä oli noin 35 %. Näin ollen kyllästettyjen bentoniittinäytteiden tiheys oli noin $2{,}16\,\mathrm{g/cm^3}$. Kolmanneksi bentoniittipuskurin on oltava riittävän muokkautuvaa, jotta se vaimentaa alle 100 mm:n leikkaustyyppisen kalliosiirtymän vaikutusta riittävästi, jotta kuparikapseli ei vaurioituisi. Lisäksi loppusijoitustila on suunniteltava siten, että bentoniittipuskurin lämpötila ei ylitä 100°C. [22]



Kuva 4: Skemaattinen kuva kahdesta montmorilloniittilevystä, joiden välissä on vesimolekyylejä, joita kationit ympäröivät [14].

Bentoniittitutkimusten perusteella Posiva Oy on lisäksi listannut useita käytetyn ydinpolttoaineen loppusijoituksen kannalta oleellisia ominaisuuksia, jotka bentoniitti toteuttaa. Näitä ovat sopiva paisuntapaine, alhainen vedenjohtavuus, riittävä lämmönjohtokyky, sopiva kantavuus, sopiva muovautuvuus ja mukautuvuus, sopiva kaasunläpäisevyys, kyky suodattaa mikro-organismeja, riittävä kemiallinen puskurikapasiteetti, kyky rajoittaa aineiden kulkeutumista, ja lisäksi bentoniitin ei ole todettu häiritsevän muiden vapautumisesteiden toimintaa. [1]

2.2 Montmorilloniitin mikrorakenne

Montmorilloniitti on paisuvahilainen mineraali, jonka kemiallinen kaava on muotoa

$$\mathrm{M_xMg_xAl_{2-x}Si_4O_{10}(OH)_2 \cdot \mathit{n}H_2O},$$

missä M koostuu taulukon 1 mukaisesti useimmiten kationeista $\mathrm{Na^+}$ ja $(0{,}5) \cdot \mathrm{Ca^{2+}}$, ja lisäksi tyypillisesti $x \approx 0{,}33$. Natrium- ja kalsiumkationit tasapainottavat molekyylin negatiivista varausta, joka muodostuu pääasiassa magnesiumin (hapetusluku II) korvatessa molekyylissä olevaa alumiinia (hapetusluku III), mutta periaatteessa myös piin (hapetusluku IV) korvautuminen alumiinilla on mahdollista. Lämpötilassa 105°C haihtuvan veden määrä kuivassa montmorilloniitissa on noin 8-10 %, eli $n \approx 2$. [22] Omissa mittauksissani olen saanut veden määräksi ennen kastelun aloittamista noin 12 % (taulukko 5). Saatuihin mittaustuloksiin vaikuttaa muun muassa bentoniitin säilytysolosuhteet kuten ilmankosteus.

Montmorilloniitti koostuu noin nanometrin paksuisista levyistä, joita on kymmeniä päällekkäin. Näiden montmorilloniittilevykerrosten välissä on kuvan 4 mukaisesti noin 0,3 nanometrin kerros vettä, mikä vastaa yhtä molekyylikerrosta. Muiden silikaattimineraalien tapaan montmorilloniitissakin piiatomia ympäröi tetraedrisesti neljä happiatomia, ja nämä $\mathrm{SiO_4}$-rakenneyksiköt kiinnittyvät happiatomien välityksellä kaksiulotteisiksi verkoiksi, joita on kaksi vastakkain. Näitä verkkoja liittävät toisiinsa kuvassa 4 näkyvät alumiini-, magnesium- ja/tai rauta-atomit, joita puolestaan ympäröi kuusi happiatomia. Kuudesta happiatomista neljä tulee tetraedriverkon kärjistä, ja loput kaksi happiatomia ovat peräisin hydroksyyliryhmästä $\mathrm{OH^-}$. [22]

Montmorilloniittimineraalin erityisominaisuus on heikosti montmorilloniittilevykerrosten välissä kiinnittyneinä olevien natrium- ja/tai kalsiumkationien vaihtuvuus ympäristönsä kanssa. Kationin vaihtokapasiteetti MX-80-tyyppisellä bentoniitilla on 75 meq/100

g [25]. Lisäksi montmorilloniitin mineraalihila voi sitoa vaihtelevan määrän vettä, sillä montmorilloniitissa vesimolekyylit diffundoituvat korkeammasta kemiallisesta potentiaalista montmorilloniittikerrosten väliin, jossa olevat kationit eivät kuitenkaan voi diffundoitua pois, jotta sähköisen varauksen tasapaino säilyisi. [14] Tästä seuraa montmorilloniitin paisuminen.

Bentoniitissa oleva vesi voidaan jakaa montmorilloniittilevyjen välissä olevaan interlamellaariveteen, mineraalirakeiden välissä olevaan vapaaseen huokosveteen ja lähellä varattuja pintoja olevaan diffuusiokerrosveteen. Veden määrän analysointia vaikeuttaa huomattavasti se, että erityisesti interlamellaariveden ja diffuusiokerrosveden ominaisuudet, kuten tiheys ja viskositeetti, voivat poiketa huomattavasti vapaan nestemäisen veden vastaavista ominaisuuksista. [22]

Kyllästettäessä bentoniittia vedellä montmorilloniittirakeiden uloimpien kerrosten on havaittu turvonneen ja ”hyytelöityneen”, kun taas sisemmät kerrokset ovat pysyneet lähes muuttumattomina [32]. Kastuessaan bentoniittinäyte muuttuukin homogeenisemmaksi, mikä nähdään esimerkiksi kuvassa 3 olevista histogrammeista harmaasävyarvojen keskihajonnan pienenemisenä. Kastuneen näytteen tihentyminen ilmenee histogrammeissa harmaasävyarvojen keskiarvon kasvamisena.

2.3 Veden kulkeutumismekanismit huokoisessa aineessa

Yksi keskeisistä huokoista ainetta karakterisoivista suureista on huokoisuus, joka määritellään ei-kiinteän aineen - siis huokosten tai nesteen - tilavuuden V_p suhteena kappaleen kokonaistilavuuteen V, toisin sanoen

$$\phi = \frac{V_\mathrm{p}}{V}. \tag{1}$$

Tarkasteltaessa esimerkiksi veden kulkeutumista huokoisessa aineessa voidaan pelkän huokoisuuden sijaan puhua efektiivisestä huokoisuudesta. Efektiivinen huokoisuus määritellään toisiinsa kytkeytyneiden huokosten avulla, joiden läpi vesi voi kulkeutua. Jos huokoisuus $\phi \approx 1$, on efektiivisen huokoisuuden arvo yleensä lähellä varsinaista huokoisuutta, kun taas vähän huokosia sisältävän aineen efektiivinen huokoisuus voi olla huomattavasti varsinaista huokoisuutta pienempi. [17] Esimerkki huokoisesta aineesta on tässä työssä tutkittava MX-80-tyyppinen bentoniitti, jonka röntgenkuvista tehty rekonstruktio on esitettynä kuvassa 5.

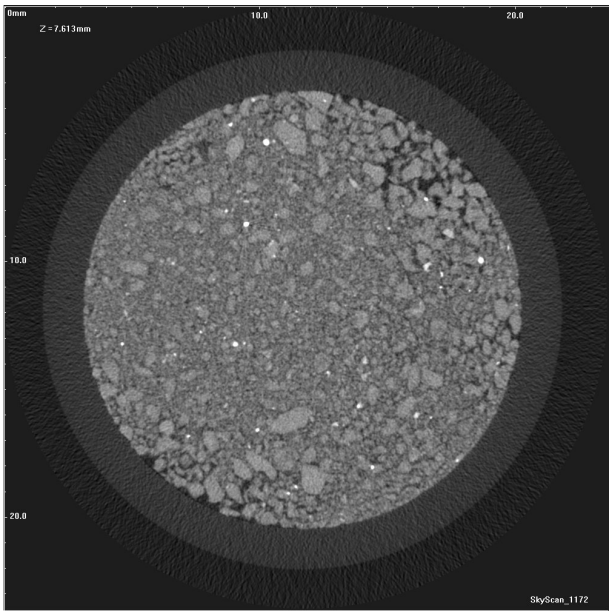
2.3.1 Konvektiivinen kulkeutuminen

Henry Darcyn 1800-luvulla fenomenologisesti löytämä laki kytkee toisiinsa kokoonpuristumattoman, tasaisen, Newtonisen virtauksen nopeuden ja väliaineessa vallitsevan painegradientin. Darcyn lain differentiaalinen muoto on [6]:

$$\vec{u} = -\frac{\vec{\kappa}}{\mu} \cdot (\nabla p - \rho \vec{g}), \tag{2}$$

missä $\vec{\kappa}$ on väliaineen ominaispermeabiliteetti, joka on yleisessä tapauksessa toisen kertaluvun symmetrinen tensori [19]

$$\vec{\kappa} = \begin{bmatrix} \kappa_{xx} & \kappa_{xy} & \kappa_{xz} \\ \kappa_{xy} & \kappa_{yy} & \kappa_{yz} \\ \kappa_{xz} & \kappa_{yz} & \kappa_{zz} \end{bmatrix}. \tag{3}$$



Kuva 5: MX-80-tyyppisen bentoniitin rekonstruktiossa huokoset näkyvät mustina kohtina harmaiden montmorilloniittirakeiden ja eri silikaattimineraalien seassa. Valkoiset kohdat viittaavat todennäköisesti silikaattimineraaleihin.

Ominaispermeabiliteetti kuvaa huokoisen aineen johtavuutta nestemäisen tai kaasumaisen aineen kulkeutuessa siinä. Ominaispermeabiliteetti onkin huokoiselle väliaineelle ominainen suure, joten kun huomioidaan myös virtaavan aineen ominaisuudet ja itse virtaustilanne, on täsmällisempää puhua ainoastaan permeabiliteetista. [6] Ominaispermeabiliteetille on johdettu eri lähtökohdista erilaisia esityksiä, joista Carmanin ja Kozenyn teoriaan pohjautuva voidaan esittää muodossa [16], [17]:

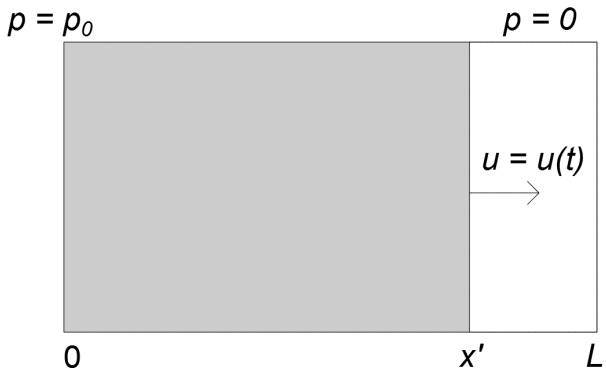
$$\kappa \propto \tau^2 S^2 \frac{\phi^3}{(1-\phi)^2}, \tag{4}$$

missä

$$\begin{aligned} \tau &= \tau(\phi) = \text{mutkittelevuustekijä}, \\ S &= S(\phi) = \text{huokoisen aineen ominaispinta-ala ja} \\ \phi &= \text{huokoisuus}. \end{aligned}$$

Lausekkeessa (4) esiintyvä mutkittelevuustekijä huomioi sen, että virtaavan aineen molekyylit joutuvat kulkemaan huokoisessa aineessa pisteestä toiseen liikkuessaan pidemmän matkan kuin pisteitä yhdistävän janan pituus olisi. Huokoisen aineen ominaispinta-alalla tarkoitetaan sen sijaan huokosten pintojen yhteenlasketun pinta-alan suhdetta kiinteän aineen tilavuusyksikköä kohden. Lisäksi yhtälössä (4) on oletettu isotrooppinen materiaali, jolloin ominaispermeabiliteettia voidaan käsitellä skalaarina.

Permeabiliteetin suuruus samalle materiaalille voi olla eri riippuen siitä, onko virtaava aine neste- vai kaasufaasissa [15], [34]. Erityisesti kun kaasumolekyylien keskimääräinen vapaa matka on samaa suuruusluokkaa kuin huokosten koko, on huomioitava sekä kaasumolekyylien keskinäiset törmäykset että kaasumolekyylien törmäykset huokosten reunoihin. Tällöin huokoisen aineen permeabiliteetti kasvaa tekijällä $1 + b/P$ verrattuna tilanteeseen, jossa virtaava aine on nestefaasissa. Tätä ilmiötä kutsutaan Klinkenbergin ilmiöksi, ja edellä tekijä b on niin sanottu Klinkenbergin tekijä, ja P on paine. [34]



Kuva 6: Kohdassa $x = 0$ vallitsevan ulkoisen paineen p_0 vaikutuksesta huokoisessa aineessa, pituus L, konvektiivisesti kulkeutuva teräväreunainen nesterintama.

Tarkastellaan seuraavaksi yhtälön (2) erikoistapauksena kuvassa 6 esitettyä yksiulotteista tilannetta, jossa oletetaan, että nesteen konvektiivinen kulkeutuminen isotrooppisessa materiaalissa [1] aiheutuu ainoastaan kohdassa $x = 0$ vallitsevasta ulkoisesta paineesta p_0 alkuehdolla $p = 0$, kun $x > 0$ (ks. esim. [9]). Tällöin nesterintaman kärjessä kohdassa x' virtausnopeudelle u, joka on tässä tapauksessa vain ajan funktio, pätee

$$\begin{aligned} u &= \frac{\mathrm{d}x'}{\mathrm{d}t} \\ &= -\frac{\kappa}{\mu}\frac{\mathrm{d}p}{\mathrm{d}x}, \end{aligned} \tag{5}$$

mistä nähdään, että on oltava $p = p(x) = ax + b$. Oletetaan, että nesterintama on teräväreunainen, jolloin alkuehdosta seuraa, että paine $p = 0$ kohdassa x'. Tällöin $a = -p_0/x'$ ja

$$\frac{\mathrm{d}x'}{\mathrm{d}t} = -\frac{\kappa}{\mu} \cdot \left(-\frac{p_0}{x'}\right), \tag{6}$$

josta saadaan nesterintaman sijainti eri ajanhetkillä t

$$x' = \sqrt{\frac{2\kappa p_0}{\mu}t}. \tag{7}$$

Näin ollen materiaaliin imeytyneen nesteen massa on

$$m = \phi\rho A x' = \phi\rho A\sqrt{\frac{2\kappa p_0}{\mu}t}, \tag{8}$$

missä

$$\begin{aligned} \phi &= \text{tarkasteltavan materiaalin huokoisuus (yhtälö (1))}, \\ \rho &= \text{nesteen tiheys ja} \\ A &= \text{materiaalin poikkipinta-ala.} \end{aligned}$$

Jos huokoisen materiaalin pituus on l, kuluu huokosten täyttymiseen aika

$$t = \frac{\mu}{2\kappa p_0}l^2, \tag{9}$$

[1] Isotrooppisen materiaalin tapauksessa permeabiliteettitensori redusoituu skalaariksi.

jos nesteen oletetaan kulkeutuvan konvektiivisesti. Erityisesti siis $t \propto 1/p_0$.

Hydraulinen johtavuus K kuvaa bentoniitin tapauksessa sitä, miten hyvin vesi voi kulkeutua huokosten muodostamassa tilassa. Hydraulinen johtavuus määritellään [25]

$$K = \frac{\kappa \rho g}{\mu}, \tag{10}$$

missä on jälleen oletettu isotrooppinen materiaali, eli ominaispermeabiliteetti voidaan ajatella skalaarina. Tarkastelemalla yhtälössä (2) esiteltyä Darcyn lakia olettaen, että termi $\rho\vec{g} = \vec{0}$, voidaan hydraulinen johtavuus määritellä nesteen virtausnopeuden $\vec{u}$ ja hydraulisen painegradientin ∇h välisenä verrannollisuuskertoimena, toisin sanoen

$$\vec{u} = -K\nabla h, \tag{11}$$

missä

$$\nabla h = \frac{\nabla p}{\rho g}, \tag{12}$$

jolloin saadaan yhtälön (10) kanssa yhtä pitävä esitys.

Hydraulisen johtavuuden arvoja MX-80-tyyppiselle bentoniitille eri bulkkitiheyksillä on listattuna taulukossa 2, josta nähdään hydralisen johtavuuden pienenevän tiheyden kasvaessa. Tiheyden lisäksi hydraulisen johtavuuden suuruuteen vaikuttavat muun muassa montmorilloniitissa olevat kationit: natriummuotoisesta montmorilloniitista koostuvalle bentoniitille hydraulisen johtavuuden arvot on havaittu olevan pienempiä kuin kalsiummuotoisesta montmorilloniitista koostuvalle bentoniitille. Käytetyn ydinpolttoaineen loppusijoituksen kannalta merkittävää on se, että hydraulinen johtavuus kasvaa liuoksen suolapitoisuuden kasvaessa. [24]

Taulukko 2: Hydraulisen johtavuuden K arvoja ($[K]$ = m/s) MX-80-tyyppiselle bentoniitille eri bulkkitiheyden arvoilla [24].

bulkkitiheys, kg/m^3	K (laskennallinen), m/s	K (kokeellinen), m/s
2130	$1 \cdot 10^{-14}$	$2 \cdot 10^{-14}$
1850	$4 \cdot 10^{-13}$	$3 \cdot 10^{-13}$
1570	$8 \cdot 10^{-11}$	$8 \cdot 10^{-11}$

2.3.2 Diffundoituminen

Diffuusio on ilmiö, jonka ajavana voimana voidaan pitää konsentraatiogradienttia. Toisaalta aineen diffundoituminen voidaan selittää pyrkimyksenä minimoida Gibbsin vapaa energia tai kemiallinen potentiaali. Mikrotasolla diffundoituminen aiheutuu molekyylien lämpöliikkeestä, jota voidaan karakterisoida molekyylin keskimääräisen vapaamatkan avulla. Erityisesti huokoisen aineen tapauksessa veden diffundoituminen huokosissa voi tapahtua höyryfaasissa. Diffuusion kvantitatiivinen kuvailu perustuu Fickin lakeihin ja Fickin 1. laki voidaan yhdessä ulottuvuudessa kirjoittaa muodossa [33]

$$J = -\frac{D}{RT} c \frac{\partial \mu}{\partial x} \tag{13}$$

missä

$J =$ diffundoituvan aineen vuo $[\mathrm{mol}/(\mathrm{m}^2 \cdot \mathrm{s})]$,
$D =$ diffuusiokerroin $(\mathrm{m}^2/\mathrm{s})$,
$R =$ kaasuvakio $[\mathrm{J}/(\mathrm{mol} \cdot \mathrm{K})]$,
$T =$ lämpötila (K),
$c =$ konsentraatio $(\mathrm{mol}/\mathrm{m}^3)$ ja
$\mu =$ diffundoituvan aineen kemiallinen potentiaali annetussa tilassa (J/mol).

Yhtälössä (13) esiintyvän kemiallisen potentiaalin lauseke voidaan esittää muodossa

$$\begin{aligned} \mu &= RT \ln\left(\frac{c}{c_0}\right) \\ &\equiv \mu_0 + RT \ln c, \end{aligned} \tag{14}$$

missä μ_0 on aineen kemiallinen potentiaali standardi olosuhteissa ($p = 1\,\mathrm{atm}, c_0 = 1\,\mathrm{mol/l}$). Yhtälöistä (13) ja (14) saadaankin Fickin 1. lain tutumpi versio suoralla yleistyksellä kolmeen ulottuvuuteen:

$$\vec{J} = -D\nabla c \tag{15}$$

Fickin 2. laki saadaan soveltamalla jatkuvuusyhtälöä

$$\frac{\partial c}{\partial t} + \nabla \cdot \vec{J} = 0 \tag{16}$$

ja yhtälön (15) mukaista Fickin 1.lakia, jolloin

$$\begin{aligned} \frac{\partial c}{\partial t} &= \nabla \cdot (D\nabla c) \\ &= D\nabla^2 c, \end{aligned} \tag{17}$$

kun diffuusiokertoimen oletetaan olevan vakio.

Tarkastellaan seuraavaksi yhtälön (17) erikoistapauksena yksiulotteista diffuusioyhtälöä

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D\frac{\partial^2 c}{\partial x^2} \tag{18}$$

tilanteessa, jossa vesi diffundoituu L:n pituisessa huokoisessa väliaineessa siten, että kohdassa $x = 0$ veden konsentraatio väliaineessa on c_0 kaikilla ajanhetkillä. Oletetaan myös, että alkutilanteessa veden konsentraatio huokoisessa aineessa on 0, kun $x > 0$. Toisin sanoen

$$\begin{aligned} c(x,0) &= 0 \;\forall\; x > 0 \\ c(0,t) &= c_0 \;\forall\; t > 0 \\ \left.\frac{\partial c}{\partial x}\right|_{x=L} &= 0. \end{aligned} \tag{19}$$

Näin saadun differentiaaliyhtälön (18) ratkaisu annetuilla reunaehdoilla on muotoa

$$\frac{c}{c_0} = 1 - \sum_{n=1,3,5,\ldots}^{\infty} \left[\frac{4}{n\pi}\exp\left(-\frac{n^2\pi^2 Dt}{4L^2}\right)\sin\left(\frac{n\pi x}{2L}\right)\right]. \tag{20}$$

Koska $c/c_0 = \rho/\rho_0$, missä ρ on veden tiheys, saadaan diffundoituneen veden massa selville integroimalla veden tiheysprofiilia yli L:n mittaisen kappaleen, jonka poikkipinta-ala on A, jolloin [9]

$$m = \frac{8\rho_0 AL}{\pi^2} \sum_{n=1,3,5,\ldots}^{\infty} \frac{1}{n^2} \left[1 - \exp\left(-\frac{n^2\pi^2 Dt}{4L^2}\right)\right]. \tag{21}$$

Koska

$$\sum_{n=1,3,5,\ldots}^{\infty} \frac{1}{n^2} = \frac{\pi^2}{8}, \tag{22}$$

niin

$$m \to \rho_0 AL, \text{ kun } t \to \infty. \tag{23}$$

Veden diffundoituessa kaasufaasissa kaasumolekyylit vuorovaikuttavat sekä muiden kaasumolekyylien että huokoisen väliaineen kanssa. Riippuen diffundoituvasta kaasusta ja huokoisen aineen mikrorakenteesta kaasu voi diffundoitua molekulaarisesti tai Knudsen-diffuusiolla. Diffuusiomekanismin määrää pitkälti niin sanottu Knudsen-luku:

$$K_n = \frac{\lambda}{d_\mathrm{p}}, \tag{24}$$

missä

$\lambda =$ kaasumolekyylin keskimääräinen vapaa matka ja
$d_\mathrm{p} =$ huokosten halkaisija.

Jos $K_n \gg 10$ Knudsen-diffuusio on hallitseva mekanismi, ja kun $K_n \ll 0{,}1$ tapahtuu diffuusio pääasiassa molekulaarisesti, jolloin kaasumolekyylien vuorovaikutus huokoisen aineen kanssa ei ole niin merkittävää. Erityisesti kun $0{,}1 < K_n < 10$, on molemmat diffuusiomekanismit huomioitava, jolloin Fickin laeissa esiintyvä diffuusikerroin voidaan laskea yhtälöstä

$$\frac{1}{D} \cong \frac{1}{D_\mathrm{mol}} + \frac{1}{D_\mathrm{Kn}}, \tag{25}$$

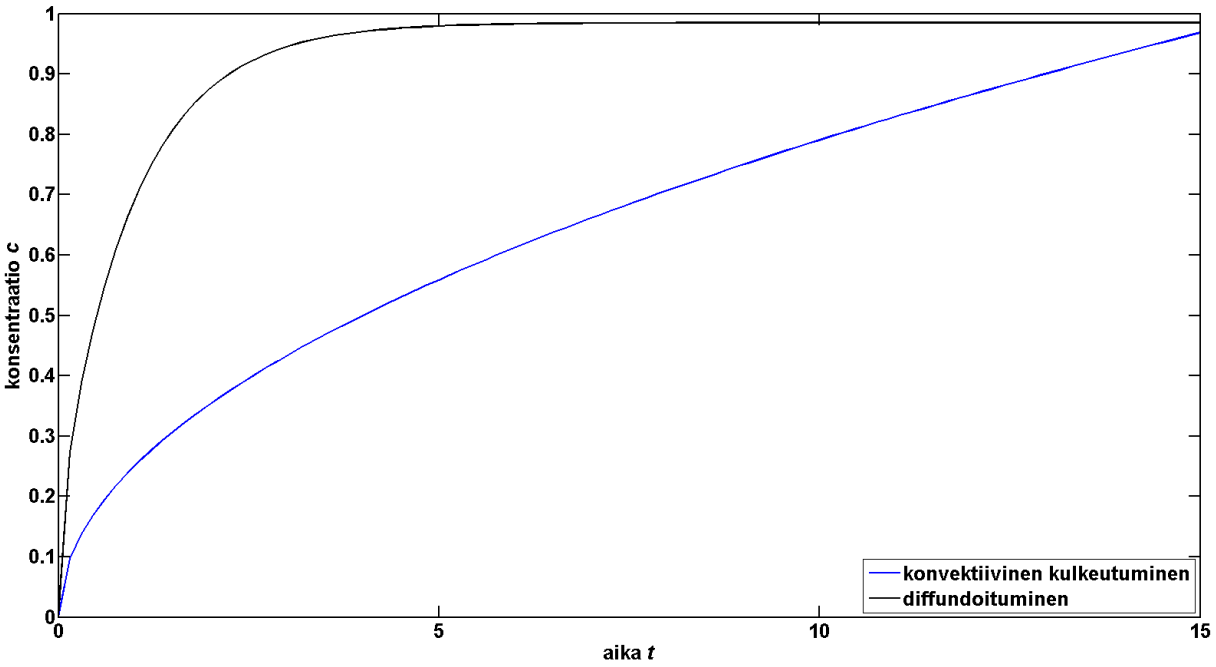
missä tekijät D_mol ja D_Kn ovat molekulaariseen diffuusioon ja Knudsen-diffuusioon liittyvät diffuusiokertoimet. [33] Myös konvektiivisen kulkeutumisen yhteydessä tarkastellun Klinkenbergin ilmiön voimakkuutta voidaan arvioida Knudsen-luvun avulla: kun $0{,}1 < K_n < 10$, on Klinkenbergin ilmiö otettava huomioon.

Yleisessä tapauksessa kaasu voi kulkeutua huokoisessa aineessa diffuusion lisäksi advektiolla, jonka matemaattinen muotoilu perustuu Darcyn lakiin. Tarkasteltaessa kokonaismassavuota voidaan yhtälöiden (2) ja (15) tulokset yhdistää lineaarisesti, jolloin

$$J_i = \frac{\kappa_i}{\mu_g} \rho_g \omega_i \nabla p - D_i \rho_g \nabla \omega_i, \tag{26}$$

missä

$\kappa_i =$ permeabiliteetti,
$\mu_g =$ kaasun viskositeetti,
$\rho_g =$ kaasun tiheys,
$p =$ kaasun kokonaispaine,
$D_i =$ diffuusiokerroin (ks. yhtälö (25)) ja
$\omega_i = i$-tyyppisten kaasumolekyylien massaosuus.



Kuva 7: Huokoisessa materiaalissa kulkeutuvan aineen konsentraation aikakehitys sekä konvektiivisen kulkeutumisen että diffundoitumisen tapauksessa.

Koska aineen konsentraatio määritellään

$$c = \frac{n}{V} = \frac{1}{MV} m, \tag{27}$$

missä

$$\begin{aligned} n &= \text{tarkasteltavan aineen ainemäärä [mol]}, \\ V &= \text{koko systeemin tilavuus [m}^3\text{] ja} \\ M &= \text{tarkasteltavan aineen moolimassa [g/mol]}, \end{aligned}$$

nähdään, että $c \propto m$. Näin ollen esimerkiksi veden konsentraation aikakehitystä sekä konvektiivisen kulkeutumisen että diffundoitumisen tapauksessa voidaan tarkastella yhtälöiden (8) ja (21) avulla. Konsentraation aikakehitystä on havainnollistettu kuvassa 7, missä on oletettu, että tarkasteltaville ajanhetkille pätee $t \leq \mu/(2\kappa p_0)l^2$ yhtälön (9) mukaisesti.

3 RÖNTGENTOMOGRAFIA MATERIAALITUTKIMUKSESSA

Röntgentomografia on kuvantamismenetelmä, jossa yksittäisistä, eri suunnista otetuista röntgen- eli projektiokuvista tehdään rekonstruktio tutkittavan kappaleen sisärakenteen selvittämiseksi. Röntgenkuvissa havaittava kontrasti syntyy, kun kuvattavan kohteen eri osat absorboivat eri määrän röntgensäteilyä. Röntgentomografiaa voidaan käyttää muun muassa materiaalitutkimuksessa, ja esimerkiksi Jyväskylän yliopistossa olevat laitteet mahdollistavat jopa nanotason ilmiöiden tutkimisen.

3.1 Röntgensäteily ja sen käyttäminen

Wilhelm Conrad Röntgen (1845–1923) havaitsi röntgensäteilyä ensimmäisen kerran vuonna 1895. Röntgensäteily on sähkömagneettista aaltoliikettä, jonka aallonpituus on noin 0,01–10 nm. Röntgenfotonien energia saadaan yhtälöstä

$$E = \frac{2\pi\hbar c}{\lambda}, \tag{28}$$

missä

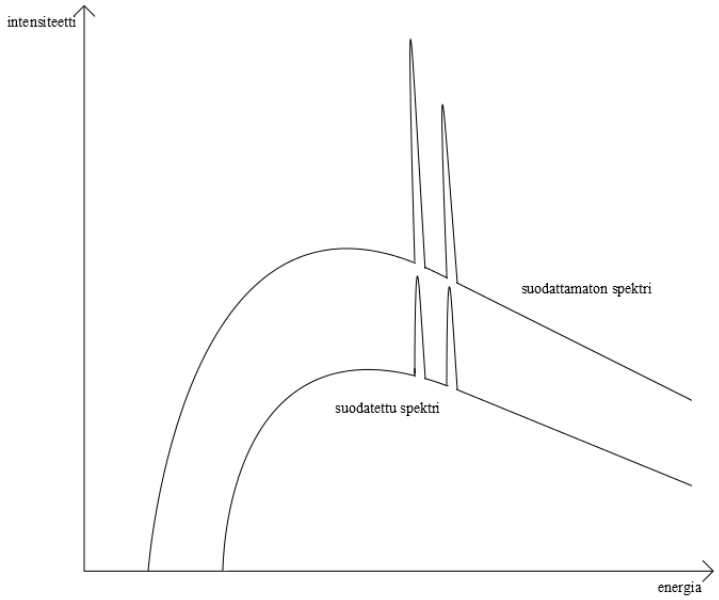
$$\begin{aligned} \hbar &= \text{Planckin vakio,} \\ c &= \text{valon nopeus ja} \\ \lambda &= \text{röntgensäteilyn aallonpituus.} \end{aligned}$$

Näin ollen röntgensäteilyn sisältämä energia on noin 100 eV–100 keV.

Röntgensäteilyä syntyy muun sähkömagneettisen aaltoliikkeen tavoin varattujen hiukkasten kiihtyvässä liikkeessä. Röntgenfotoneja voi muodostua myös elektronien sähköisissä siirtymissä atomissa tilalta toiselle. Röntgensäteilyä tuotetaan usein röntgenputkien avulla. Röntgenputkessa elekroneja kiihdytetään kiihdytysjännitteen avulla, minkä jälkeen elektronit törmäytetään esimerkiksi volframista valmistettuun kohtiomateriaaliin. Tällöin elektronit joutuvat voimakkaasti hidastuvaan liikkeeseen, jolloin syntyy jarrutussäteilyä. Toisaalta jos elektronien energia on riittävän suuri, ne voivat virittää kohtiomateriaalin elektroneja korkeaenegisemmille tiloille, ja näiden viritystilojen purkautuessa syntyy karakteristista säteilyä. Röntgensäteilyn spektri koostuukin jatkuvasta jarrutussäteilystä ja karakteristisista piikeistä kuvan 8 mukaisesti.

Röntgenputken lisäksi röntgensäteilyä voidaan tuottaa niin sanottuna synkrotronisäteilynä, jolloin saadaan intensiivisempää säteilyä, jonka energiaspektri on kapeampi [31]. Röntgenputkea käytettäessä spektristä suodatetaankin usein matalaenerginen pää pois, jos se ei kykene läpäisemään tutkittavaa näytettä. Tämä vähentää häiriöitä muodostuvasta röntgenkuvasta, mutta samalla säteilyn intensiteetti pienenee yli koko spektrin, mikä nähdään kuvasta 8. Suodatuksen lisäksi röntgensäteilyn spektriin voidaan vaikuttaa kohtiomateriaalin valinnalla ja kiihdytysjännitteen suuruutta muuttamalla. [30]

Pian röntgensäteilyn löytymisen jälkeen sitä alettiin hyödyntää lääketieteellisessä tutkimuksessa. Suomessa ensimmäinen röntgenlaite otettiin käyttöön jo vuonna 1900 [30],



Kuva 8: Suodattamaton ja suodatettu röntgensäteilyn spektri, jotka koostuvat jatkuvasta jarrutussäteilystä ja karakteristisista piikeistä.

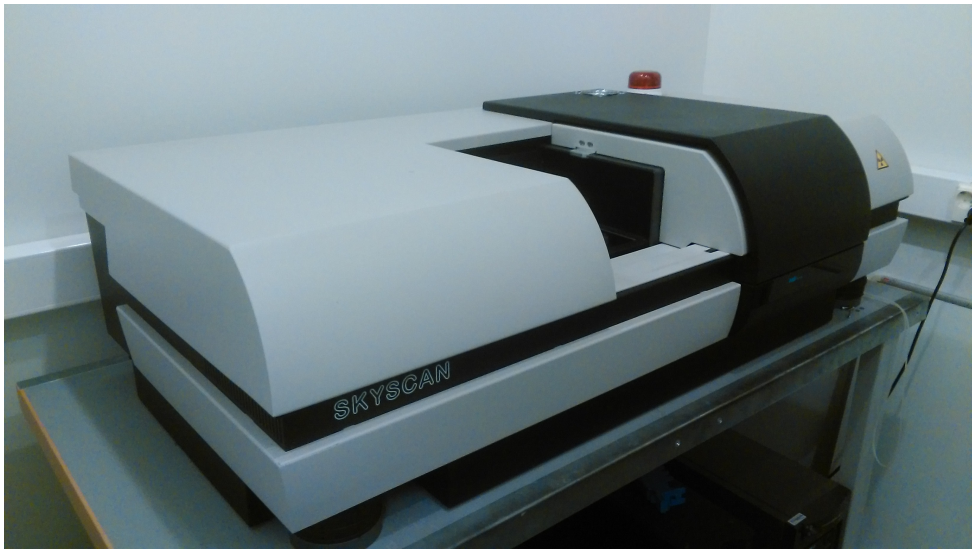
ja nykyisin Suomessa tehdään vuosittain noin 3,9 miljoonaa röntgentutkimusta. Lääketieteessä röntgensäteilyä hyödynnetään muun muassa röntgenkuvauksissa, sädehoidossa, mammografiatutkimuksissa ja eläinröntgentoiminnassa. [2] Myös röntgentomografisia menetelmiä hyödynnetään lääketieteessä, ja vuonna 1979 lääketieteen Nobel menikin Yhdysvaltoihin tietokoneavusteisen tomografian kehittämisestä. Lääketieteellisessä käytössä röntgenlaitteiden käyttöä rajoittaa potilaaseen kohdistettavan säteilyannoksen suuruus, joten datan keruuaika on pidettävä mahdollisimman lyhyenä. Ongelmana onkin, miten käyttää säteilyä siten, että siitä on vähemmän haittaa kuin hyötyä.

Materiaalitutkimuksessa röntgensäteilyä hyödynnetään tomografisten menetelmien lisäksi esimerkiksi materiaalien kiderakennetutkimuksessa röntgendiffraktion keinoin. Teollisuudessa röntgensäteilyä käytetään muun muassa materiaalien laadunvalvonnassa, pinnankorkeusmittauksissa sekä paperin paksuuden ja koostumuksen määrittämisessä. Lääketieteellisestä käytöstä poiketen röntgensäteilyn käyttöä ei yleisesti ottaen ole tarpeen rajoittaa materiaalitutkimuksessa ja teollisuudessa, vaan usein datan keruuajan pidentäminen johtaa tarkempiin tuloksiin.

3.2 Röntgenmikrotomografia

Stuart Stock määrittelee kirjassaan mikrotomografialla tutkittavien objektien kokoluokaksi vähintään 50–100 μm, jolloin voidaan tutkia ominaisuuksia, joiden kokoluokka on noin 1–10 μm. Mikrotason ilmiöt ovat tärkeitä tutkittaessa esimerkiksi biologisia rakenteita tai komposiiteissa olevia vaurioita. [31] Tässä työssä tutkittavien MX-80-näytteiden dimensiot ovat useita millimetrejä. Röntgenmikrotomografiaa hyödynnetäänkin useilla eri tieteenaloilla, kuten hammastutkimuksissa, elektroniikan komponenttien kehityksessä, eläin- ja kasvitieteessä sekä geologiassa [3].

Tässä työssä käytettävä mikrotomografialaitteisto, SkyScan 1172, on esitettynä kuvassa 9. Laitteen ominaisuuksia on listattu taulukkoon 3.



Kuva 9: Tämän työn mittauksissa käytetty mikrotomografialaitteisto SkyScan 1172.

Taulukko 3: SkyScan 1172-mikrotomografialaitteiston ominaisuuksia.

Röntgenlähteen kiihdytysjännite	20–100 kV
Röntgenlähteen anodivirta	0–250 μA
Röntgenlähteen maksimiteho	10 W
Laitteen erotuskyky	$\gtrsim 2\,\mu$m
Pikselikoko	0,7–35 μm
Objektin maksimihalkaisija	5,4–68 mm
Kuvakentän suuruus	max. 34 mm x 18 mm
Suodatus	alumiini tai alumiini+kupari

3.3 Röntgensäteilyn vaimeneminen ja Lambert-Beerin laki

Niin röntgenmikrotomografian kuin muunkin röntgenkuvaamisen teoria perustuu monokromaattisen röntgensäteilyn intensiteetin vaimenemiseen homogeenisessa materiaalissa Lambert-Beerin-lain

$$I = I_0 \exp(-\mu x) \tag{29}$$

mukaisesti [10], missä

I_0 = vaimenemattoman röntgensäteilyn intensiteetti,
μ = lineaarinen vaimenemiskerroin ja
x = röntgensäteilyn kulkema matka materiaalissa.

Ottamalla käyttöön niin sanottu massavaimenemiskerroin $\eta \equiv \mu/\rho$ voidaan yhtälö (29) kirjoittaa muodossa

$$I = I_0 \exp\left(-\eta\rho x\right), \tag{30}$$

missä

$$\eta \propto Z^m \lambda^n, \tag{31}$$

ja

Z = atomiluku,
λ = käytettävän röntgensäteilyn aallonpituus,
$m \approx 3$–4 ja
$n \approx 3$.

Näin ollen massavaimenemiskerroin riippuu voimakkaasti absorboivan aineen atomiluvusta ja röntgensäteilyn aallonpituudesta. [31] Jos tutkittava näyte sisältää useampaa kuin yhtä komponenttia, voidaan massavaimenemiskerroin määrittää summana [10]

$$\eta = \sum_i w_i \eta_i, \tag{32}$$

missä

w_i = i:nnen komponentin painoprosenttiosuus näytteessä ja
η_i = i:nnen komponentin massavaimenemiskerroin.

Yhtälön (30) perusteella ohuessa dx:n paksuisessa elementissä

$$\frac{\mathrm{d}I}{I} = -\eta\rho \mathrm{d}x, \tag{33}$$

missä suureen $\eta\rho$ oletetaan pysyvän vakiona yli dx:n. Integroimalla yhtälöä (33) puolittain saadaan

$$\ln\left(\frac{I}{I_0}\right) = -\int \mu(x)\mathrm{d}x, \tag{34}$$

ja edelleen

$$I = I_0 \exp\left(-\int \mu(x)\mathrm{d}x\right). \tag{35}$$

3.4 Röntgenkuvien rekonstruointi

Kaksiulotteisia röntgenkuvia rekonstruoitaessa mitataan yhtälön (34) mukaisesti suuretta I/I_0 paikan funktiona eri suunnista. Näin rekonstruktio kappaleesta, jonka röntgensäteily läpäisee, saadaan tehtyä. Tavoitteena on muodostaa niin sanotusta kohdefunktiosta eli lineaarisen vaimenemiskertoimen μ paikkajakaumasta kaksi- tai kolmeulotteinen malli. Tilavuusalkion eli vokselin, joka on kaksiulotteisen pikselin kolmiulotteinen vastine, sisältämä numeerinen arvo eli harmaasävy on verrannollinen mitattavan objektin elektronitiheyteen.

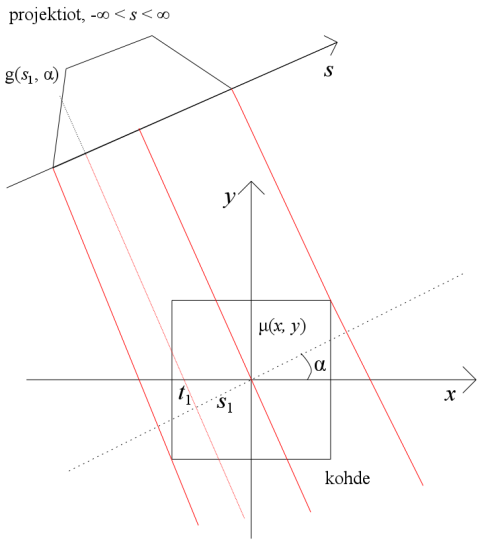
3.4.1 Rekonstruointimenetelmiä

Tutkittavan kappaleen kolmiulotteisen sisärakenteen rekonstruointi kaksiulotteisista röntgenkuvista otti suuria harppauksia eteenpäin tietokoneiden kehittymisen myötä. Varsinaisesti tietokoneavusteisen röntgenmikrotomografian juuret ovat 1980-luvun alussa [31]. Röntgenkuvien rekonstruointiin onkin kehitetty useita erilaisia menetelmiä [29], [31], jotka eroavat toisistaan muun muassa laskentanopeuden ja rekonstruktiossa esiintyvien häiriöiden osalta. Yleisin rekonstruktiomenetelmä, jota myös Jyväskylän yliopistossa käytössä olevat ohjelmat käyttävät, perustuu niin sanottuun takaisinprojisointiin.

Idealtaan yksinkertainen rekonstruointimenetelmä perustuu lineaarisen yhtälöryhmän suoraan ratkaisemiseen: jos kuva sisältää m x n pikseliä, ratkaistaan yhtälöryhmä, jossa on m x n yhtälöä. Jotta yhtälöryhmä olisi suljettu, on myös mittauksia tehtävä vähintään m x n kappaletta. Menetelmän ongelmia ovat, että mittaukset vaatisivat paljon aikaa ja toisaalta myös valtavan määrän laskentakapasiteettia, jotta satojen tuhansien – jopa miljoonien – yhtälöiden samanaikainen ratkaiseminen olisi mahdollista.

Toinen rekonstruointimenetelmä on niin kutsuttu algebrallinen rekonstruktio, joka perustuu vastaavan lineaarisen yhtälöryhmän iteratiiviseen ratkaisemiseen. Antamalla jokaiselle vokselille jokin tietty alkuarvo, voidaan iteratiivisesti selvittää, miten elektronitiheys on eri vokseleille jakautunut, kun röntgensäteilyn vaimenemisen voimakkuus eri suunnissa tunnetaan. Käytännössä iteratiivista lähestymistapaa rekonstruktioita tehtäessä käytetään harvoin, mutta menetelmä on käyttökelpoinen esimerkiksi, kun röntgenkuvia puuttuu määrätyistä suunnista.

Röntgenkuvien rekonstruoinnin apuna voidaan käyttää myös Fourier-muunnoksia. Ottamalla kaksiulotteinen Fourier-muunnos kaksiulotteisesta röntgenkuvasta ja eri suunnista otetuista yksiulotteisista projektioista voidaan numeerinen laskenta suorittaa niin sanotussa k-avaruudessa. Menetelmä perustuu havaintoon, että yksiulotteinen Fourier-muunnos yhdensuuntaisista projektioista kuvan 10 mukaisella kulmalla α funktion $\mu = \mu(x, y)$ määrittelyalueen yli antaa saman tuloksen kuin kaksiulotteinen Fourier-muunnos funktiosta μ vastaavalla kulmalla α k_x-akselin suhteen. Tulos on erityisen helppo osoittaa tilanteessa, kun $\alpha = 0$: olkoot projektiot $g(s, \alpha = 0)$ tunnettuja ja funktio $\mu = \mu(x,y)$ tuntematon. Tällöin [13]



Kuva 10: Kuvattava objekti ja röntgensäteilyn vaimenemisen perusteella määritetyt projektiot kiinnitetyllä kulmalla α, kun etäisyys s objektin pyörimisakselista vaihtelee.

$$\begin{aligned} F(k_x, k_y = 0) &\equiv \mathcal{F}(\mu(x,y)) \\ &= \int_{-\infty}^{\infty}\int_{-\infty}^{\infty} \mu(x,y)\exp[-i2\pi(k_x x + \overbrace{k_y y}^{=0})]\mathrm{d}x\mathrm{d}y \\ &= \int_{-\infty}^{\infty}\int_{-\infty}^{\infty} \mu(x,y)\exp(-i2\pi k_x x)\mathrm{d}x\mathrm{d}y \\ &= \int_{-\infty}^{\infty}\left(\int_{-\infty}^{\infty}\mu(x,y)\mathrm{d}y\right)\exp(-i2\pi k_x x)\mathrm{d}x \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} g(x,\alpha=0)\exp(-i2\pi k_x x)\mathrm{d}x, \\ &= \mathcal{F}(g(x,\alpha=0)), \end{aligned} \tag{36}$$

joten funktio μ saadaan selville laskemalla Fourier-käänteismuunnos.

Takaisinprojisoinnin matemaattinen ongelma on funktion μ määrääminen, jos funktion μ viivaintegraalit kaikkien suorien yli tunnetaan. Tämän ongelman ratkaisi Johann Radon (1887–1956) jo vuonna 1917. Funktion μ Radon-muunnos määritellään

$$\mathcal{R}(\mu(s,\alpha)) = \int_{-\infty}^{\infty} \mu(s\cos\alpha - t\sin\alpha, s\sin\alpha + t\cos\alpha)\mathrm{d}t, \tag{37}$$

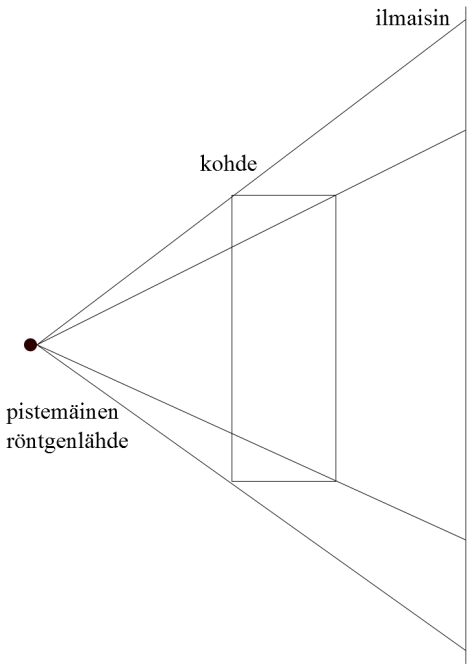
missä $s \in \mathbb{R}$ ja $\alpha \in [0, 2\pi)$. Funktion μ argumentti saadaan kiertomatriisista, toisin sanoen

$$\begin{bmatrix} x' \\ y' \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \cos\alpha & -\sin\alpha \\ \sin\alpha & \cos\alpha \end{bmatrix} \begin{bmatrix} s \\ t \end{bmatrix}. \tag{38}$$

Kiinnostuksen kohteena oleva funktio μ voidaan selvittää lausekkeesta [26]

$$\mu(x) = -\frac{1}{2\pi^2}\int_0^{\infty}\int_0^{2\pi} \frac{1}{s}\frac{\partial}{\partial s}\{\mathcal{R}[\mu(x(\cos\alpha - \sin\alpha) + s, \alpha)]\}\mathrm{d}\alpha\mathrm{d}s. \tag{39}$$

Käytännössä emme voi tehdä röntgenmittauksia kaikkien mahdollisten suorien yli, joita on äärettömän paljon, vaan rekonstruoitu kuva on muodostettava käytettävissä olevasta



Kuva 11: Pistemäisen röntgenlähteen tuottaman kartiomaisen säteilykeilan vaikutus ilmaisimelle muodostuvaan kuvaan kohteesta.

datasta. Lisäksi yhtälöiden (37) ja (39) johdossa on oletettu, että kappaleen läpäisevät röntgensäteet ovat yhdensuuntaisia. Tässä työssä käytettävä röntgenlähde on kuitenkin lähes pistemäinen, joten röntgensäteilykimppu on kartiomainen, mistä seuraa, että yhtälöt (37) ja (39) vaativat pieniä korjauksia (ks. esim. [7]). Kartiomainen röntgensäteilykeila vaikuttaa muodostuvaan röntgenkuvaan esimerkiksi siten, että kuvattavan objektin samassa tasossa olevat etu- ja takareuna projisoituvat ilmaisimelle eri kohtiin, mitä on havainnollistettu kuvassa 11.

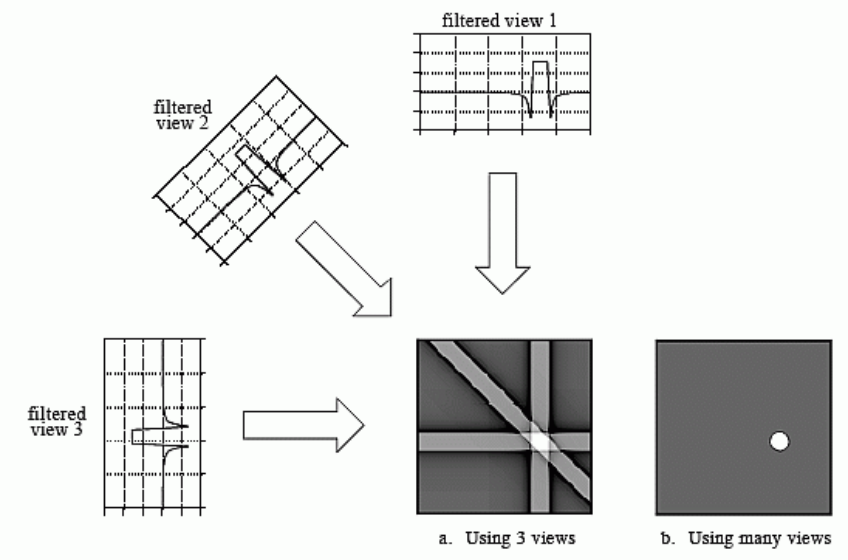
Takaisinprojisoinnissa kunkin vokselin saama lukuarvo määräytyy kyseisen vokselin läpi kulkevien viivaintegraalien arvojen summana. Tästä seuraa vääristymiä rekonstruktiokuvaan. Jotta saatu kuva vastaisi paremmin todellisuutta, voi olla tarpeen suodattaa saatuja projektioita ennen takaisinprojisointia, jotta sumeus eri kohteiden ympäriltä häviäisi [3], [31]. Tämän takaisinprojisoinnin ja konvoluution yhdistämistä on havainnollistettu kuvassa 12. Oletetaan, että projektiot $g(s,\alpha) = \mathcal{R}(\mu(x,y))$ tunnetaan kaikilla $\alpha \in [0,\pi)$ ja halutaan selvittää funktio μ [11], [31]:

1. Lasketaan Fourier-muunnos mitatuille projektioille g, toisin sanoen

$$G(\xi,\alpha) = \mathcal{F}(g(s,\alpha)) \ \forall \ \alpha \in [0,\pi). \tag{40}$$

2. Funktion μ takaisinprojektio $b \equiv \mathcal{B}(g(s,\alpha))$ on funktio μ konvoloituna funktiolla h, missä $h : \mathbb{R}^2 \to \mathbb{R}, h(x,y) = \frac{1}{\sqrt{x^2+y^2}}$. Koska lisäksi Fourier-muunnos kahden funktion konvoluutiosta on näiden funktioiden Fourier-muunnosten tulo, saadaan:

$$\begin{aligned} \mathcal{F}(b(x,y)) &\equiv \mathcal{F}(\mu(x,y) * h(x,y)) \\ &= \mathcal{F}(\mu(x,y))\mathcal{F}(h(x,y)) \\ &\equiv h(\xi_1,\xi_2)\mathcal{F}(\mu(x,y)), \end{aligned} \tag{41}$$



Kuva 12: Suodatettua takaisinprojisointia käytettäessä saadut projektiot suodatetaan ennen takaisinprojisoinnin suorittamista [29].

mistä edelleen

$$\mu(x,y) = \mathcal{F}^{-1}\left[\sqrt{\xi_1^2+\xi_2^2}\mathcal{F}(b(x,y))\right]. \tag{42}$$

Termiä $\xi_1^2+\xi_2^2 \equiv |\xi|$ kutsutaan suodatusfunktioksi. Seuraavaksi on laskettava edellisessä kohdassa saadun funktion G ja tämän suodatusfunktion painotettu tulo:

$$\hat{G}(\xi,\alpha) = |\xi|G(\xi,\alpha). \tag{43}$$

3. Lasketaan edellä saadun funktion $\hat{G}$ Fourier-käänteismuunnos:

$$\hat{g}(s,\alpha) = \mathcal{F}^{-1}(\hat{G}(\xi,\alpha)). \tag{44}$$

4. Määritetään funktion $\hat{g}$ takaisinprojektio, jolloin saadaan ratkaistua funktio μ:

$$\mu(x,y) = \mathcal{B}(\hat{g}(s,\alpha)) \equiv \int_0^\pi \hat{g}(x\cos\alpha + y\sin\alpha,\alpha)\mathrm{d}\alpha. \tag{45}$$

3.4.2 Rekonstruoinnin artefakteja

Kuten kuvasta 8 nähdään, röntgensäteilyn spektri on polykromaattinen monokromaattisen sijaan, joten yhtälö (35) ei tarkkaan ottaen ole voimassa. Näin ollen lineaarinen vaimenemiskerroin ei ole vain paikan funktio, vaan se riippuu myös energiasta. Tästä johtuen yhtälön (35) sijaan tulisi tarkastella yhtälöä

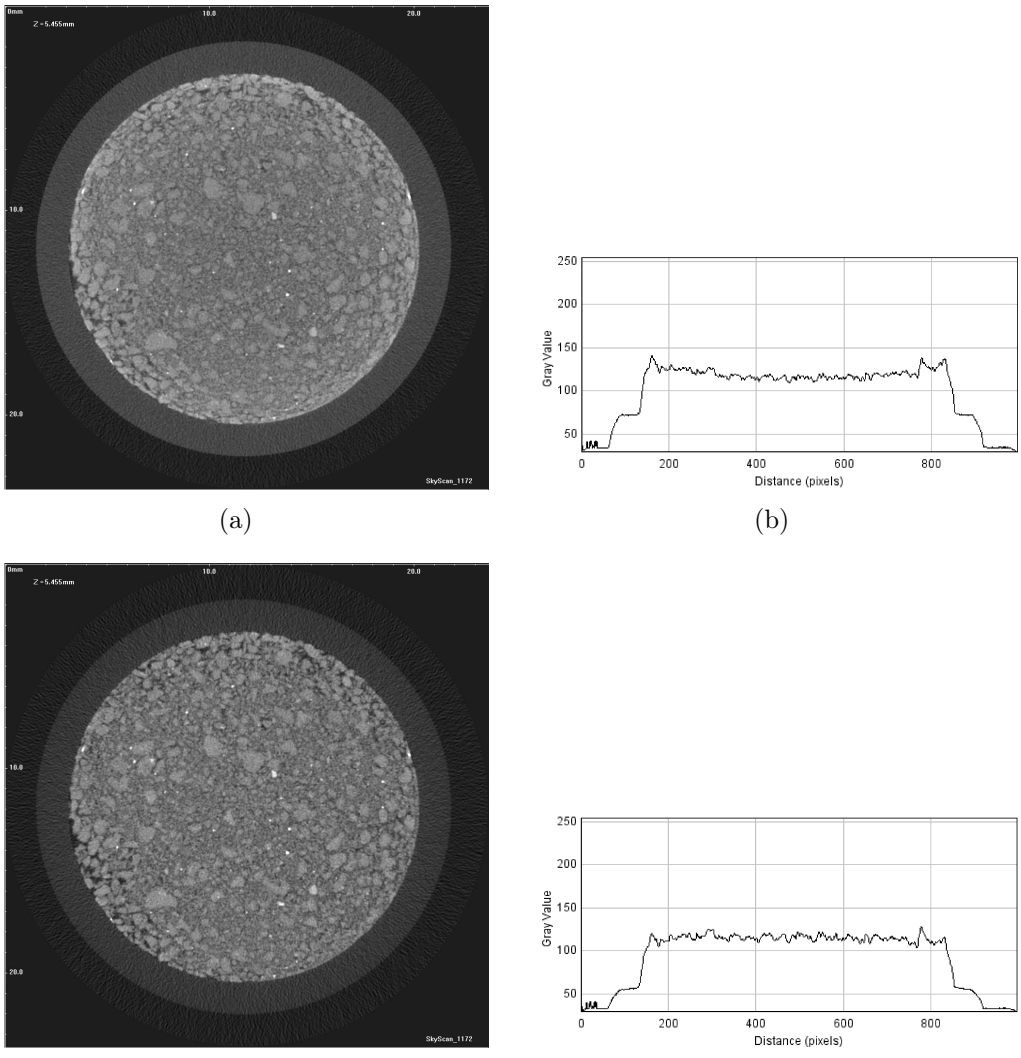
$$\frac{I}{I_0} = \int f(E)\exp\left(-\int \mu(s,E)\mathrm{d}s\right)\mathrm{d}E, \tag{46}$$

missä f on röntgenlähteen energiaspektri [21].

Rekonstruktiota tehtäessä polykromaattisen säteilyn käyttö ilmenee säteilyn kovenemisena (”beam-hardening”), mikä aiheuttaa sen, että tutkittavan kappaleen reunat näkyvät

rekonstruktiossa tiheämpänä kuin näytteen keskiosa, vaikka näyte olisi homogeeninen. Kuvassa 13 ilmiö nähdään siten, että rekonstruoitaessa korjaamattomia röntgenkuvia näytteen reunat ovat vaaleampia, eli reunojen harmaasävyarvo on suurempi kuin näytteen keskikohdassa.

Säteilyn kovenemista voidaan pienentää käyttämällä suodattimia, mikä kuitenkin pienentää säteilyn intensiteettiä, kuten kuvasta 8 nähdään. Intensiteetin pieneneminen puolestaan pidentää kuvaamisen kestoa [8]. Rekonstruktiota tehtäessä säteilyn kovenemiseen liittyä efekti saadaan eliminoitua tässä työssä käytetyn NRecon-ohjelman säteilyn kovenemisen korjaukseen liittyvän parametrin avulla. Toisaalta luvussa 3.4.3 kuvattu dynaamisen taustakuvakorjaus korjaa myös säteilyn kovenemiseen liittyvän efektin, jolloin harmaasävyarvo pysyy lähes vakiona yli näytteen poikkileikkauksen, mikä nähdään kuvasta 13.

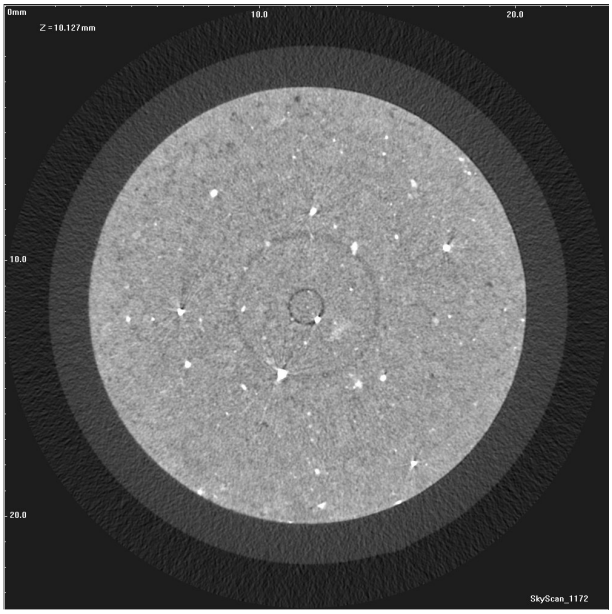


(a) (b)

(c) . (d)

Kuva 13: Poikkileikkaus MX-80-näytteen rekonstruktiosta, johon ei ole tehty säteilyn kovenemisen korjausta (a) ja tämän rekonstruktion poikkileikkauksen harmaasävyarvot kuvan vasemmasta reunasta mitatun etäisyyden funktiona (b). Rekonstruktio röntgenkuvista, joihin on tehty dynaaminen taustakuvakorjaus (luku 3.4.3) (c) ja tätä vastaava harmaasävyprofiili (d).

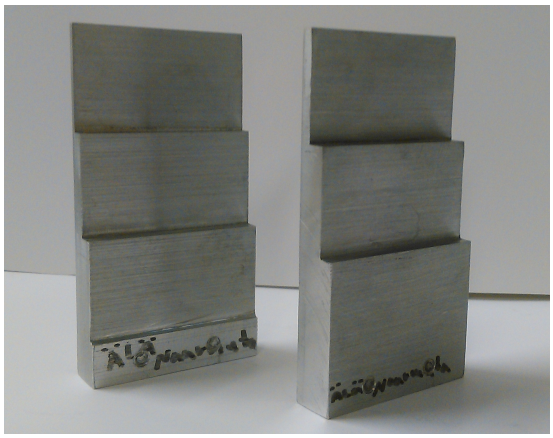
Säteilyn kovenemisen lisäksi rekonstruktiossa voi esiintyä kuvassa 14 näkyviä ympyrämäisiä rengasartefakteja. Rengasartefaktien perimmäinen syy on luultavasti ilmaisimen yksittäisten pikselien vasteiden epätasaisuus; artefaktien ympyrämäinen muoto selittyy näytteen pyörimisellä akselinsa ympäri. Ilmaisimen vaste saapuvaan röntgensignaaliin voi aiheuttaa rengasartefakteja, jos ilmaisimen herkkyys muuttuu kalibraatioiden välissä, säteilyn koveneminen tekee ilmaisimen vasteesta epälineaarista, tai itse laitteistossa on erilaisia häiriöitä [28]. Koska rengasartefaktit selvästi vaikuttavat kuvan keskimääräiseen harmaasävyarvoon, on näillä häiriöillä haitallisia vaikutuksia tomografisiin menetelmiin perustuvassa kvantitatiivisessa analyysissä.



Kuva 14: MX-80-näytteen rekonstruktiossa näkyviä rengas- ja juova-artefakteja.

Kuvassa 14 näkyvät tähtimäiset häiriöt ovat juova-artefakteja, joita aiheuttavat useimmiten röntgensäteilyä voimakkaasti absorboivat, kuvassa valkoisena näkyvät partikkelit. Juova-artefaktien syiksi on listattu muun muassa säteilyn koveneminen, sironta, kohina, kohteen liikkuminen ja eksponentiaalinen reunagradientti-ilmiö, EEGE [4]. EEGE on luonteeltaan epälineaarinen ilmiö, joka aiheutuu röntgensäteilyn eksponentiaalisesta vaimenemisesta materiaalissa ja röntgensäteilysuihkusta, jonka leveys on äärellinen johtuen röntgenlähteen äärellisistä dimensioista. Suihkun äärellisestä leveydestä johtuen tutkittavan kappaleen yli laskettavat viivaintegraalit joudutaan keskiarvoistamaan. Ilmiö aiheuttaa artefakteja erityisesti, kun tutkittavassa kohteessa on epätavallisen teräviä reunoja, jolloin kappaleen tiheysgradientti voi olla paikallisesti erittäin suuri. [12]

Rekonstruktiossa voi esiintyä myös liikeartefakteja, jotka aiheutuvat näytteen liikkumisesta skannaamisen aikana. Ongelmia tulee myös, jos näytteen pyörimisakselia ja kameran keskilinjaa ei ole keskitetty. Lisäksi käytettäessä skannaamisessa liian suurta kulmaaskelta, voivat mikrorakenteen analysointimahdollisuudet heikentyä.



Kuva 15: Dynaamisen taustakuvakorjauksen apuna käytetyt kuusi alumiinilevyä, joiden paksuudet tunnetaan.

3.4.3 Dynaaminen taustakuvakorjaus

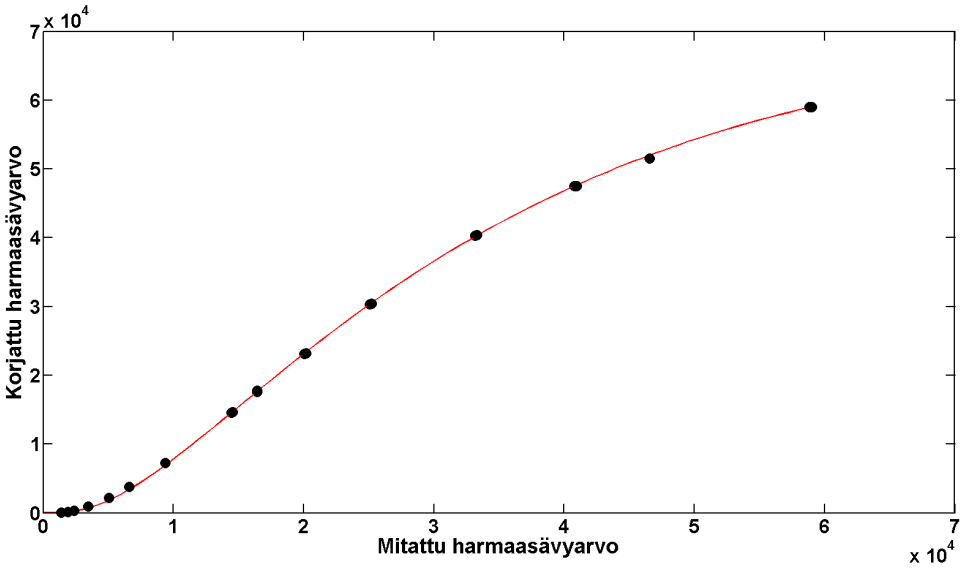
Ennen röntgenkuvauksen aloittamista on tarpeellista tehdä niin sanottu taustakuvakorjaus. Ideana on korjata näytteestä otetut röntgenkuvat pikseli pikseliltä käyttäen apuna röntgenkuvaa, joka on otettu samoissa olosuhteissa ilman näytettä. Usein taustakuvakorjaukseen liittyy myös kuva, joka on otettu kokonaan ilman anodivirtaa.

Taustakuvakorjausta tarvitaan, koska röntgenlähde ja ilmaisin eivät ole ideaalisia: Ensinnäkin röntgenlähde tuottaa polykromaattisen spektrin. Lisäksi röntgenputkesta tulevaa säteilyä on vähemmän niissä suunnissa, joiden muodostama kulma anodin eli kohtiomateriaalin pinnan suhteen on pieni. Tämä Heel-efektiksi kutsuttu ilmiö aiheutuu anodin varjostaessa omaa säteilyään. [30] Toisaalta ilmaisimen herkkyys ei ole vakio, ja ilmaisimella voi näkyä ”haamukuvia” edellisistä näytteistä.

Toisaalta röntgenlähteen ja ilmaisimen epästabiilius eri skannauskertojen välillä vaikeuttaa tässä työssä tehtävän vesipitoisuuden kvantitatiivista määritystä näytteestä; noin kaksi viikkoa kestävien mittaussarjojen aikana kaikkien eri skannauskertojen tulisi olla keskenään vertailukelpoisia. Tämä on erityisen tärkeää, koska vesipitoisuuden määrittäminen perustuu pikseli pikseliltä tehtävään harmaasävyarvojen erotusten laskentaan. Näin ollen on ollut tarpeen kehittää perinteisen taustakuvakorjauksen avuksi dynaaminen taustakuvakorjaus, jossa käytetään apuna kuvassa 15 näkyviä alumiinilevyjä. Alumiinin käyttö levyjen materiaalina on bentoniitin tapauksessa perusteltua, koska alumiinin atomiluku on lähellä bentoniitille laskettavissa olevaa efektiivistä atomilukua, ja yhtälön (31) perusteella massavaimenemiskerroin $\mu/\rho \propto Z^m$, missä $m \approx 3$–4.

Ensimmäisen alumiinilevyn paksuudet ovat 1,60 mm, 4,93 mm sekä 8,95 mm ja toisen levyn vastaavasti 2,82 mm, 6,95 mm sekä 10,34 mm. Levyjen oletetaan olevan niin tasaisia, että röntgensäteily vaimenee tasaisesti koko levyn tilavuuden yli lineaarisen vaimenemiskertoimen ollessa 1,35 1/cm. Dynaaminen taustakuvakorjaus siis poistaa röntgenlähteen ja ilmaisimen epäideaalisuuksista aiheutuvia ongelmia, mutta sen avulla myös säteilyn kovenemiseen liittyvä efekti saadaan eliminoitua.

Kun SkyScanille on tehty perinteinen taustakuvakorjaus, otetaan ensin kuva ilman alumiinilevyjä, jonka jälkeen kaikki kuusi alumiinilevyä röntgenkuvataan. Tämän jälkeen tehdään varsinainen mittaus, jonka päätteeksi otetaan jälleen kuva ilman näytettä ja alu-



Kuva 16: Dynaamisen taustakuvakorjauksen avulla laskettu korjattu harmaasävyarvo mitatun harmaasävyarvon funktiona.

miinilevyjä sekä kuusi kuvaa eri paksuisista alumiinilevyistä. Röntgenkuvia otettaessa käytetään taulukossa 4 olevia asetuksia sillä erotuksella, että keskiarvoistettavien kuvien lukumäärä on 63. Saadut alumiinilevyistä otetut röntgenkuvat jaetaan alueisiin ja lasketaan niiden harmaasävykeskiarvot. Tämän jälkeen jokaiseen alueeseen tehdään oma sovitus ja interpoloidaan saadut sovituskertoimet jokaiseen pikseliin. Lopuksi röntgenkuvat korjataan sovituksella

$$I_{\text{korj}} = \exp[K_0 + K_1 \ln(I_{\text{mitattu}}) + K_2 \ln^2(I_{\text{mitattu}})], \tag{47}$$

missä vakiot $K_i, i = 0,1,2$, on saatu lineaarisesti interpoloimalla. Korjatut harmaasävyarvot on esitetty mitatun harmaasävyarvon funktiona kuvassa 16.

4 KOKEELLISET MENETELMÄT

Tämän työn tavoitteena on selvittää, kuinka hyvin Tero Harjupatanan pro gradu -tutkielmassa 'Veden kulkeutumisen ja muodonmuutosten mittaaminen bentoniittinäytteissä röntgentomografiamenetelmällä' puhdistetulle bentoniitille kehitetyt kokeelliset menetelmät soveltuvat MX-80-tyyppisen bentoniitin tutkimiseen [9]. Lähtökohtana on MX-80-näytteiden kuvaaminen mikrotomografialaitteistolla, minkä jälkeen saatujen tulosten analysointi tehdään numeerisesti MATLAB-ohjelmistolla.

4.1 Mittausten kulku

Tässä työssä käytetään mikrotomografialaitteistona kuvassa 9 olevaa SkyScan 1172:ta. Mittauksissa käytetyt asetukset ovat esitettynä taulukossa 4. Skannattujen MX-80-näytteiden kuivatiheys $\rho_{\mathrm{b0}} \approx 1{,}6\,\mathrm{g/cm^3}$, ja valmis näyte sekä näytteenpidike ovat esitettynä kuvassa 17. Tehdyt näytteet olivat sylinterin muotoisia siten, että niiden säde $r = 8{,}5\,\mathrm{mm}$ ja korkeus $h = 10\,\mathrm{mm}$. Näin ollen näytteiden kuivatiheys voitiin määrittää lausekkeesta

$$\rho_{\mathrm{b0}} = \frac{m}{1{,}121\pi r^2 h}, \tag{48}$$

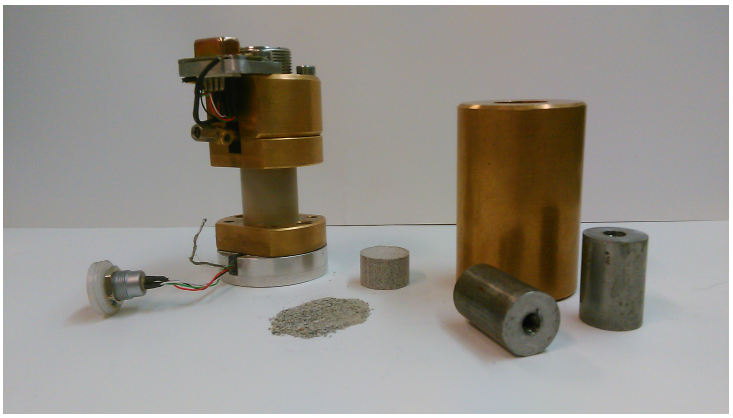
missä m on valmiin näytteen massa, ja tekijä 1,121 huomioi näytteen sisältämän alkukosteuden (taulukko 5).

Taulukko 4: SkyScan 1172-laitteen asetukset MX-80-näytteiden röntgenmikrotomografiamittauksissa.

Kiihdytysjännite	100 kV
Virta	81 μA
Suodatin	alumiini+kupari
Kameran kuvakoko	1000x524
Kuvan pikselikoko	23,7 μm
Valotusaika	474 ms
Keskiarvoistettavien kuvien lukumäärä	10
Satunnaisliike [2]	10
Kiertokulma-askeleen pituus	0,7°
Näytteen kierto 360°	käytössä

Ennen skannausta ja sen jälkeen suoritettiin luvussa 3.4.3 kuvatun dynaaminen taustakuvakorjauksen edellyttämät kalibrointimittaukset. Tuloksia analysoitaessa käytettiin ennen skannausta ja sen jälkeen otettujen taustakorjauskuvien keskiarvoa. Kuvasta 18 nähdään, että dynaamiseen taustakuvakorjaukseen liittyvän normituksen avulla eri skannauskerrat saadaan vertailukelpoiseksi keskenään; perinteinen taustakuvakorjaus ja säteilyn kovenemiseen liittyvä korjaus eivät kuvan 18 perusteella tätä tee.

[2] Satunnaisliikkeen amplitudia kasvattamalla voidaan vähentää rengasartefaktien määrää rekonstruktioissa; tällöin skannausaika kuitenkin kasvaa [3].



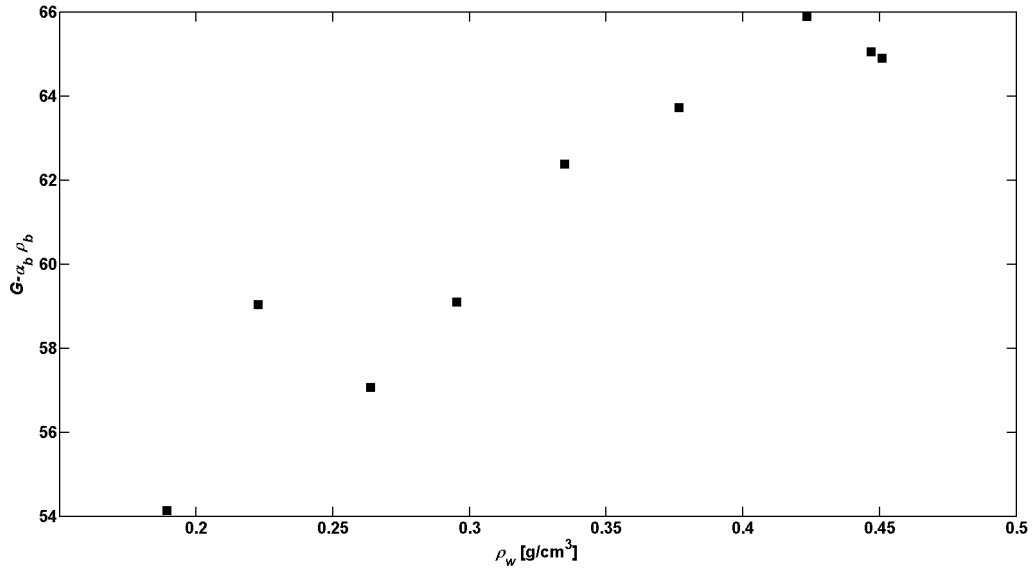
Kuva 17: Työssä käytetty näytteenpidike, MX-80-tyyppistä bentoniittia, valmis bentoniittinäyte ($\rho_{b0} \approx 1{,}6\,\mathrm{g/cm^3}$) ja näytteen valmistukseen käytetty ontto sylinteri.

Jokaisen mittauksen aluksi näytteeseen kohdistettiin pieni alkujännitys näytteenpitimen yläpäässä olevan kiristysruuvin avulla. Näin näyte ja näytteenpitimessä halkaisijltaan 15 mm olevat sintterilevyt saatiin tiiviisti kiinni toisiinsa. Tämän jälkeen näyte skannattiin ennen kastelun aloittamista, jolloin sen kosteuspitoisuus oli noin 12,1 %. Tämä tila on referenssitila. MX-80-näytteiden vesipitoisuus alkutilassa määritettiin kuivaamalla MX-80-jauhetta folioastiassa 105°C:n lämpötilassa noin vuorokauden ajan. Taulukkoon 5 koottujen tulosten perusteella näytteen alkukosteus on $(12{,}095 \pm 0{,}012)$ %. Näytteen kastelussa käytettiin niin sanottua Allard-ph-7-vettä, jonka koostumus on esitettynä taulukossa 6 [20]. Koska näytteenpitimessä olevien sintterilevyjen halkaisijat olivat lähes yhtä suuria kuin MX-80-näytteiden halkaisijat, voitiin näytteen kastumisen olettaa olevan lähes yksiulotteista.

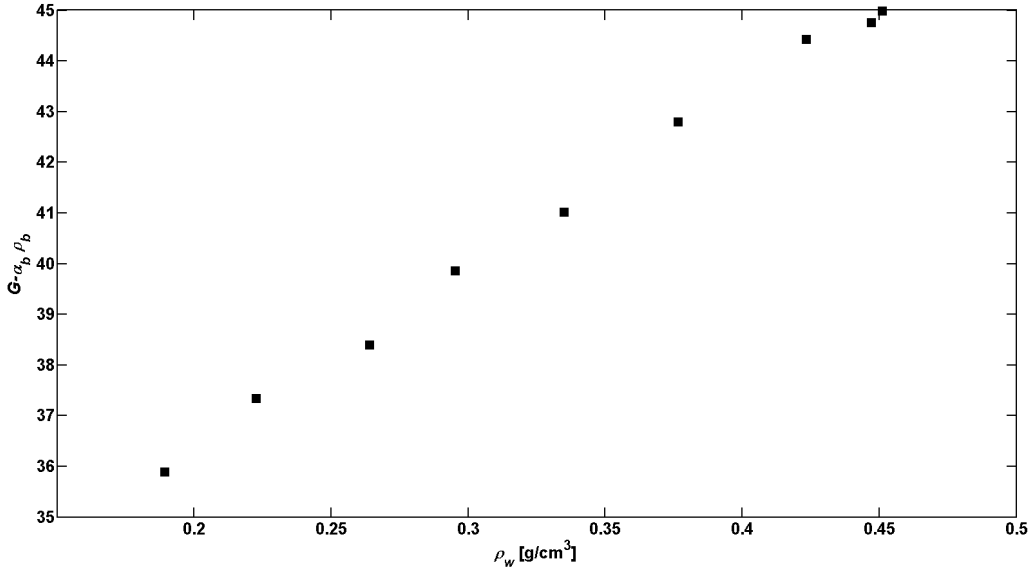
Taulukko 5: Mittaustulokset MX-80-näytteiden alkukosteuden määrittämiseksi: mittauspäivämäärä, näytteen massa ennen kuivausta ja kuivauksen jälkeen sekä näiden avulla määritetty kosteuspitoisuus.

pvm	m (ennen kuiv.) [g]	m (kuiv. jälkeen) [g]	kp [%]
09.06.2015	8,6615	7,7253	12,12
23.06.2015	9,5866	8,5538	12,07
16.07.2015	9,8291	8,7674	12,11
17.08.2015	9,5794	8,5473	12,08

Näytteen kastelu aloitettiin täyttämällä näytteenpitimen kastelukanavat, minkä jälkeen näyte ja pidike punnittiin. Saatua tulosta käytettiin referenssimassana, kun näytteeseen sitoutuneen veden määrä selvitettiin tulosten analysointia varten. Kastelun aloittamisen jälkeen näytteenpitimen ylä- ja alapäähän kytkettiin kuvan 19 mukaisesti voima-anturit, joiden avulla voitiin seurata näytteen kohdistamaa painetta ja voimaa näytteenpitimen reunoihin, minkä näytteen kastuminen aiheutti. Skannaukset suoritettiin noin kahden tunnin, kuuden tunnin, 12 tunnin, 24 tunnin, 36 tunnin sekä kolmen, viiden, seitsemän ja 14 vuorokauden kuluttua kastelun aloittamisesta. Ensimmäisen MX-80-näytteen mittaus kesti vain seitsemän vuorokautta. Näytteen massa punnittiin ennen ja jälkeen skannauksen, ja tuloksia analysoitaessa käytettiin näiden avulla lineaarisesti interpoloimalla saatavaa näytteen massaa skannauksen keskikohdassa.



(a)



(b)

Kuva 18: Yhtälöä (50) mukaillen kolmannesta kastelukokeesta saaduista mittauspisteistä laskettu termi $G - \alpha_\mathrm{b}\rho_\mathrm{b}$ veden osatiheyden ρ_w funktiona, kun röntgenkuviin on tehty pelkkä säteilyn kovenemisen korjaus (a) ja dynaaminen taustakuvakorjaus (b).

Sitoutuneen veden massan määrittämisessä tapahtuva systemaattinen virhe voitiin selvittää kuivaamalla näyte mittaussarjan lopuksi ja määrittämällä näytteeseen sitoutuneen veden määrä. Mahdollinen systemaattinen virhe mittaustuloksiin aiheutui todennäköisesti ennen kastelun aloittamista, kun näytteenpitimen kastelukanavat täytettiin vedellä; jos bentoniittinäyte sitoi tästä vedestä osan itseensä kastelukanavien täytön aikana, saattoi referenssimassan määrittämisessä tapahtua virhe.

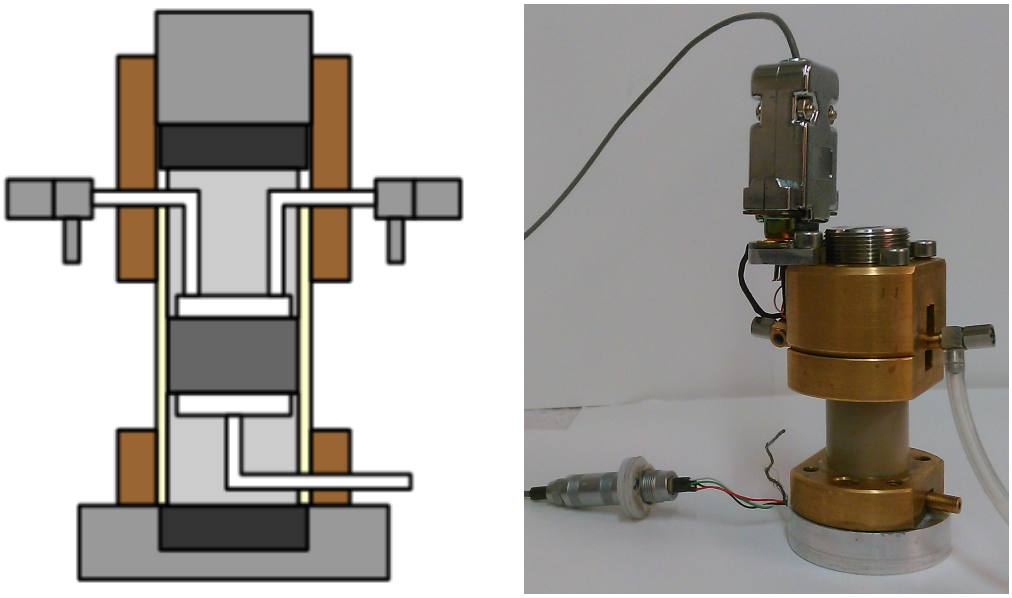
Toisen MX-80-näytteen tapauksessa massan määrittämisessä tapahtui todennäköisesti tällainen virhe, mikä nähdään kuvasta 20. Kun näyte kuivattiin 105 °C:ssa saatiin kosteuspitoisuudeksi 34,2 %, joka on huomattavasti suurempi kuin punnitustulosten avulla määri-

tetty 28,0 %. Saatu ero tulosten välillä vastaa noin 0,227 g vettä, mikä on todennäköisesti referenssimassan määrittämisessä tapahtuneen virheen suuruus; lisäämällä tämä massa saatuihin mittaustuloksiin nähdään datapisteiden välillä relaation $G - \alpha_\mathrm{b}\rho_\mathrm{b} \propto \rho_\mathrm{w}$ pätevän melko hyvin, kuten yhtälön (50) perusteella kuuluu.

Röntgenkuvien rekonstruointi tehtiin Nrecon-ohjelmalla. Rekonstruktiota tehtäessä käytettiin taulukon 7 mukaisia asetuksia. Rekonstruoiduista kuvista määritettiin näytteen, näytteenpitimen putken ja ilman alueet olettamalla näyte ja putki ellipsin muotoisiksi. Koska näytteen keskiakseli ei yleisessä tapauksessa ole röntgenkuvien keskipisteessä, voitiin edellä määritetyn ellipsin parametrien avulla siirtää näytteen keskipiste röntgenkuvien keskelle. Muodonmuutosten laskemista varten röntgenkuvien koko pienennettiin puoleen alkuperäisestä.

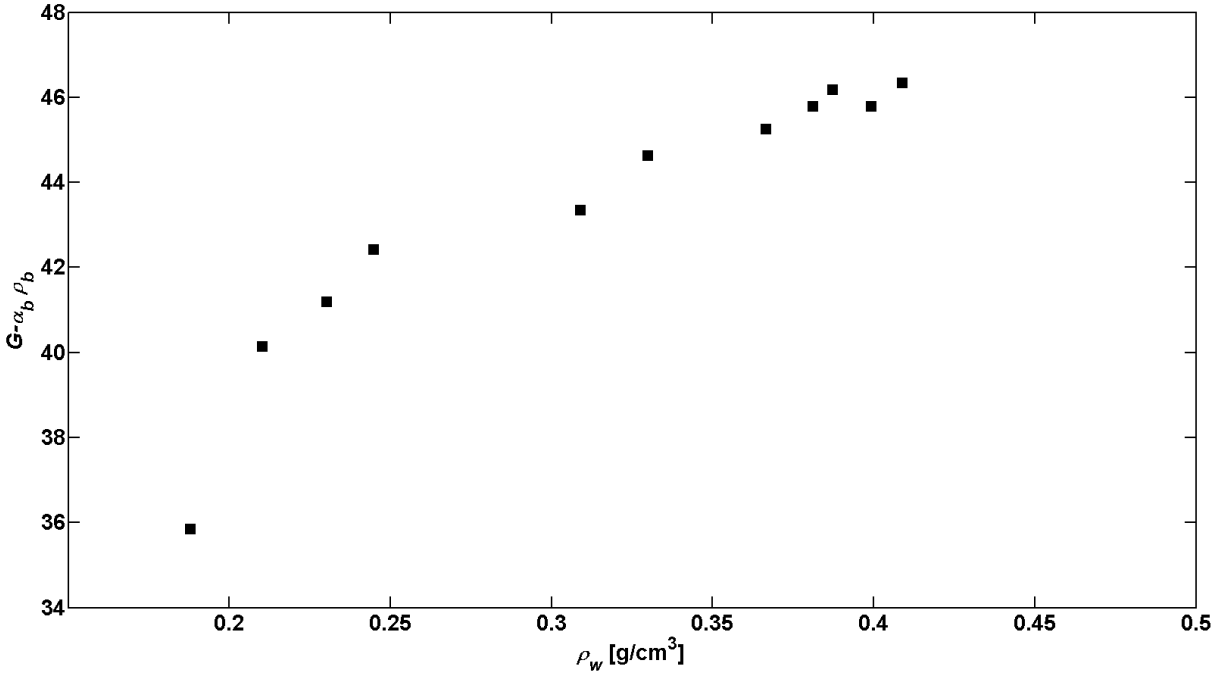
Taulukko 6: Allard-pH-7-veden koostumus.

	mg/l
Na	52,43
K	3,91
Ca	17,94
Mg	4,32
SiO_2	6,44
SO_4	9,61
Cl	40,80
HCO_3	122,9

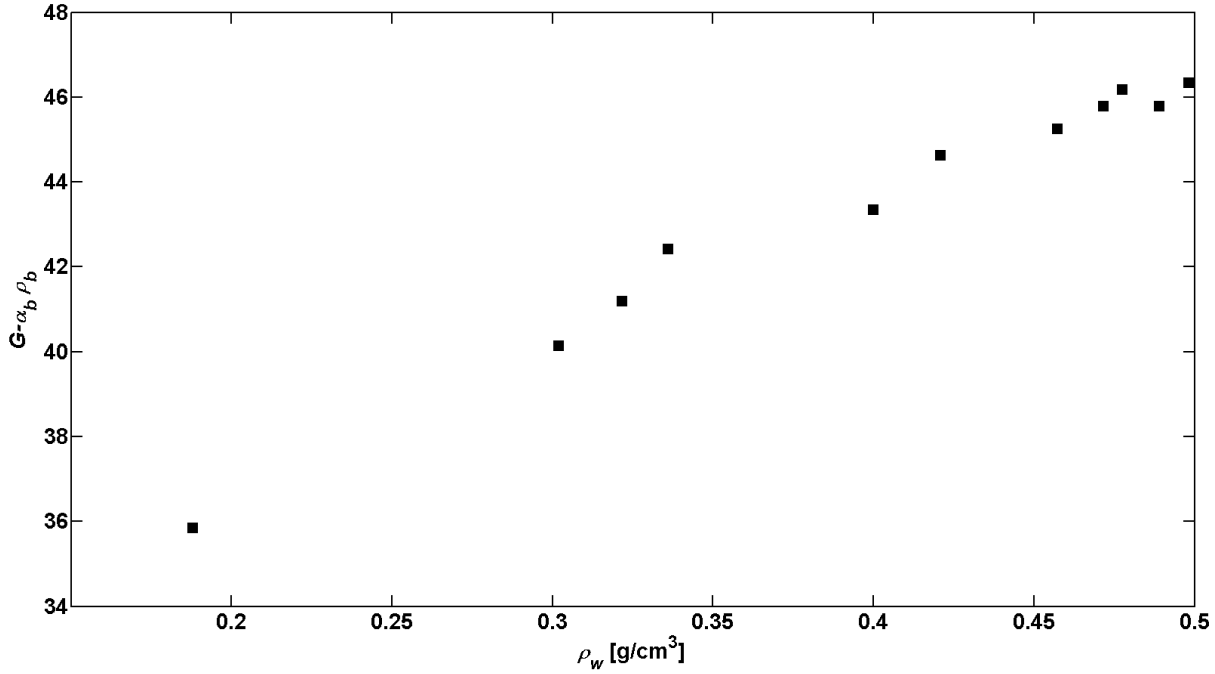


(a) (b)

Kuva 19: Näytteenpidikkeen kaaviokuva (a) ja näytteenpidike, johon on kiinnitetty kasteluletku ja voima-anturit sekä näytteen ylä- että alapäähän (b).



(a)



(b)

Kuva 20: Yhtälöä (50) mukaillen toisesta kastelukokeesta saaduista mittauspisteistä laskettu termi $G - \alpha_\mathrm{b}\rho_\mathrm{b}$ veden osatiheyden ρ_w funktiona ennen (a) ja jälkeen (b) näytteen kuivaamalla saadun todellisen kosteuspitoisuuden määrittämistä.

Taulukko 7: Nrecon-rekonstruktio-ohjelmassa käytetyt asetukset sekä dynaamisille taustakuvakorjatuille että korjaamattomille kuville.

	Korjatut kuvat	Korjaamattomat kuvat
Kameran keskiakselin ja näytteen pyörimisakselin jälkikohdistus	1.00	1.00
Rengasartefaktien korjaus	10	10
Säteilyn kovenemisen korjaus	0 %	30 %
Matkavaimennuskerroin	-0,004...0,03	-0,004...0,03

4.2 Kalibrointimittaukset

Yhtälön (32) perusteella voidaan vedellä kastellun MX-80-näytteen tapauksessa kirjoittaa

$$\mu = \mu_\mathrm{b} + \mu_\mathrm{w} = \eta_\mathrm{b}\rho_\mathrm{b} + \eta_\mathrm{w}\rho_\mathrm{w}, \tag{49}$$

joten olettamalla, että rekonstruktiossa näkyvän vokselin harmaasävyarvo G on suoraan verrannollinen lineaariseen vaimenemiskertoimeen, saadaan lauseke [8]

$$\begin{aligned} G &= C + k\mu \\ &\equiv C + \alpha_\mathrm{b}\rho_\mathrm{b} + \alpha_\mathrm{w}\rho_\mathrm{w} \\ &= C + (\alpha_\mathrm{b} + \xi\alpha_\mathrm{w})\rho_\mathrm{b}, \end{aligned} \tag{50}$$

missä

$$\begin{aligned} C, \alpha_\mathrm{b}, \alpha_\mathrm{w} &= \text{vakiotermejä}, \\ \rho_\mathrm{b} &= \text{bentoniitin osatiheys tutkittavassa näytteessä}, \\ \rho_\mathrm{w} &= \text{veden osatiheys tutkittavassa näytteessä ja} \\ \xi &= \frac{\rho_\mathrm{w}}{\rho_\mathrm{b}} \text{ on näytteen vesipitoisuus.} \end{aligned}$$

Materiaalin i osatiheys $\rho_i = \omega_i\bar{\rho}_i$, missä ω_i on materiaalin tilavuusosuus näytteessä ja $\bar{\rho}_i$ materiaalin tiheys [8]. Yhtälöissä (49) ja (50) ilman vaikutus lineaarisen vaimenemiskertoimen ja siten harmaasävyarvoon oletetaan merkityksettömäksi. Näin ollen saadaan tason yhtälö kolmessa ulottuvuudessa, jolloin sovittamalla saatu data tähän funktioon, voidaan vakiot selvittää.

Vakioiden C, α_b ja α_w selvittämiseksi tehtiin varsinaisten mittausten lisäksi myös kalibrointimittauksia. Kalibrointimittauksia oli kahdenlaisia: Ensinnäkin MX-80-bentoniitista tehtiin eri kuivatiheyksisiä näytteitä ($\rho_\mathrm{b0} = 1{,}26...1{,}88\,\mathrm{g/cm^3}$), joita ei kasteltu. Saadut tulokset ovat esitettynä taulukossa 8 ja kuvassa 18. Erot taulukoitujen, numeerisessa laskennassa käytettyjen bentoniitin osatiheyksien ja yhtälön (48) avulla laskettujen kuivatiheyksien välillä liittyvät näytteen tilavuuden määrittämiseen. Osatiheydet on määritetty selvittämällä näytteen säde sekä ylä- ja alapinnan koordinaatit rekonstruktiosta, mihin liittyy jonkin verran epävarmuutta. Toisaalta erityisesti tiheitä näytteitä ei välttämättä saatu puristettua 10 mm:n korkuisiksi, mikä puolestaan voi aiheuttaa laskettuihin kuivatiheyden arvoihin virhettä.

Tämän lisäksi tehtiin kaksi mittausta, joissa noin 16 tuntia kastumassa ollut MX-80-näyte skannattiin ja tämän jälkeen viipaloitiin ensin kahteen ($\rho_\mathrm{b0} = 1{,}59\,\mathrm{g/cm^3}$) ja sitten

kolmeen ($\rho_{b0} = 1{,}77\,\mathrm{g/cm^3}$) tasakokoiseen osaan sylinterin akselia vastaan kohtisuorassa suunnassa. Kunkin osan vesipitoisuus määritettiin kuivaamalla näytteet 105°C:n lämpötilassa. Tämän jälkeen selvitettiin näiden osien rekonstruktiokuvassa näkyvän keskimääräisen harmaasävyarvon ja vesipitoisuuden välinen korrelaatio. Tästä mittauksesta saadut tulokset ovat koottuna taulukossa 9.

Kaiken kaikkiaan yhtälössä (50) olevien vakioiden selvittämisessä käytetty data on esitettynä esitettynä kuvassa 21, jonka perusteella

$$\begin{aligned} C &= 32 \pm 6, \\ \alpha_b &= (61 \pm 4)\,\mathrm{cm^3/g} \text{ ja} \\ \alpha_w &= (34 \pm 3)\,\mathrm{cm^3/g}. \end{aligned} \tag{51}$$

Saaduista tuloksista nähdään, että tason yhtälön vakiotermin C määrittämiseen liittyvä suhteellinen epävarmuus on noin 2–3-kertainen verrattuna vakioiden α_b tai α_w suhteellisiin virheisiin. Epävarmuutta aiheuttavat muun muassa rekonstruktioissa olevat artefaktit, joiden vaikutus keskimääräisiin harmaasävyarvoihin voi erityisesti kastelukokeissa vaihdella skannauksesta toiseen bentoniitissa tapahtuvista muodonmuutoksista johtuen. Kastelukokeissa myös veden määrittämiseen liittyy epävarmuutta, mikä aiheuttaa tuloksiin enemmän heilahtelua kuin kuivia bentoniittinäytteitä käytettäessä.

Taulukko 8: Bentoniitin osatiheyden ρ_b ja veden osatiheyden ρ_w riippuvuus rekonstruoitujen kuvien keskimääräisistä harmaasävyarvoista, kun bentoniitista tehtiin viisi näytettä eri kuivatiheyksillä alkukosteuden ollessa 12,1 %. 'KA' viittaa ennen ja jälkeen skannausta otettujen dynaamisten taustakorjauskuvien keskiarvoon, ja 'B' viittaa ainoastaan skannauksen jälkeen otettuihin dynaamisiin taustakorjauskuviin.

ρ_b [g/cm^3]	ρ_w [g/cm^3]	Harmaasävyarvo (KA)	Harmaasävyarvo (B)
1,24	0,150	112,5	113,1
1,38	0,167	121,6	122,2
1,54	0,186	131,8	131,9
1,65	0,200	140,2	140,1
1,78	0,215	148,8	149,4

4.3 Näytteen muodonmuutoskentän määrittäminen

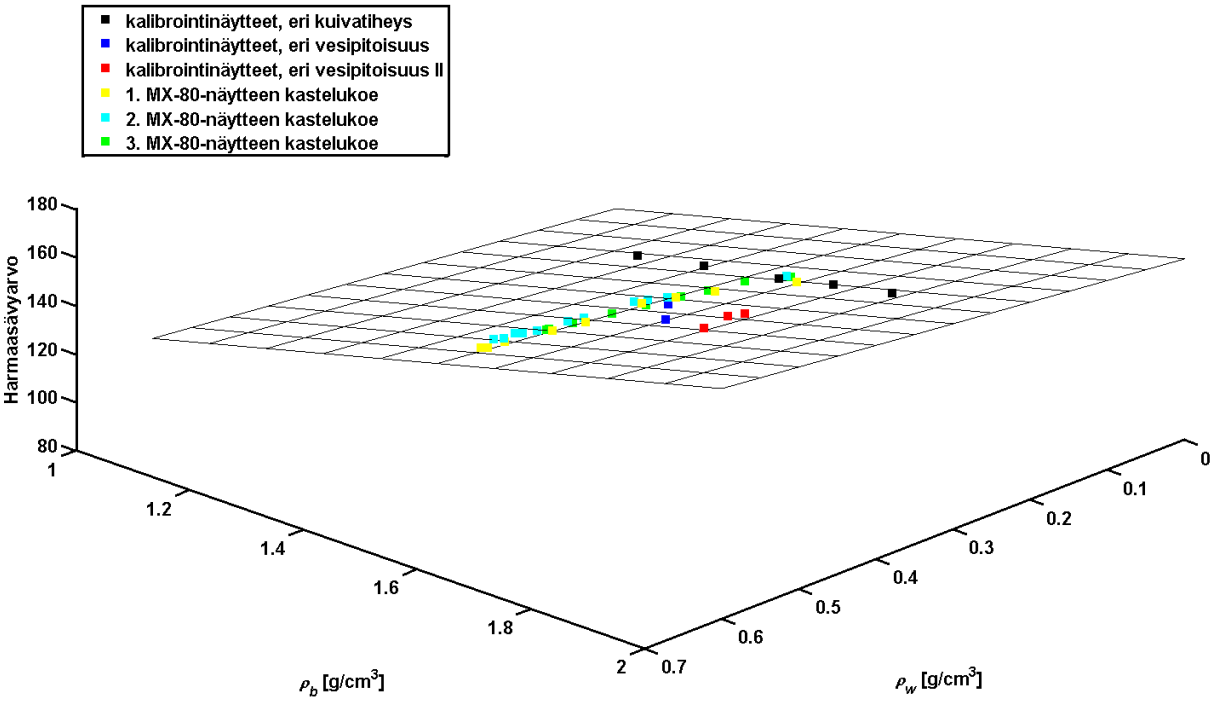
Näytteen muodonmuutosten määrittäminen perustuu tomografiakuviin muodostettaviin suorakulmaisiin, kolmiulotteisiin hilapisteistöihin. Kun referenssikuvasta jokaisen hilapisteen ympäriltä otetaan tässä tapauksessa kooltaan 41x41x41-pikseliä oleva vertailualue, vastaava vertailualue oletetaan löytyvän deformoituneesta kuvasta vokselien erotusten neliösumman minimikohdasta. Siirtymiä haettiin 9x9x17-pikselin kokoiselta alueelta - tämä vastaa särmiötä, jonka tilavuus on noin 0,018 mm^3 pikselikoon ollessa 23,7 μm. [9]

Koska MX-80-näyte oli erityisesti kastumattomassa tilassa varsin heterogeenistä, ei muodonmuutosten määrittämiseen tarvittu erityisiä merkkipartikkeleitä; todennäköisesti MX-80-näytteessä olevat kvartsikiteet ja muut silikaattimineraalit (taulukko 1) eivät reagoineet näytteen kastumiseen juuri mitenkään, joten niitä voitiin käyttää apuna muodonmuutosten määrittämisessä. Kuvassa 22 näkyy rekonstruoituja kuvia eri ajanhetkillä, joissa

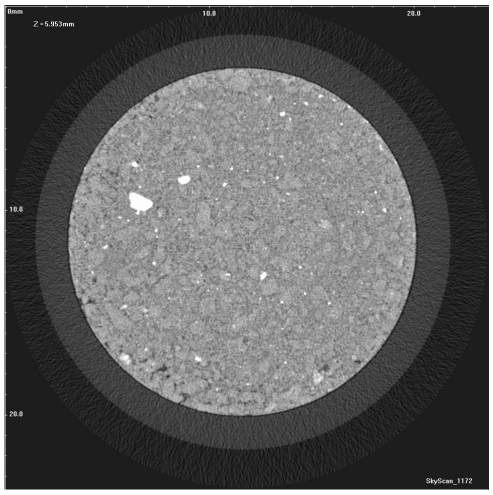
näkyvien partikkelien perusteella siirtymiä voitiin laskea muodonmuutoskenttien määrittämiseksi.

Taulukko 9: Bentoniitin osatiheyden ρ_b ja veden osatiheyden ρ_w riippuvuus rekonstruoitujen kuvien keskimääräisistä harmaasävyarvoista, kun kaksi kastumassa ollutta bentoniittinäytettä viipaloitiin ensin kahteen ja sitten kolmeen osaan. 'KA' viittaa ennen ja jälkeen skannausta otettujen dynaamisten taustakorjauskuvien keskiarvoon, ja 'B' viittaa ainoastaan skannauksen jälkeen otettuihin dynaamisiin taustakorjauskuviin.

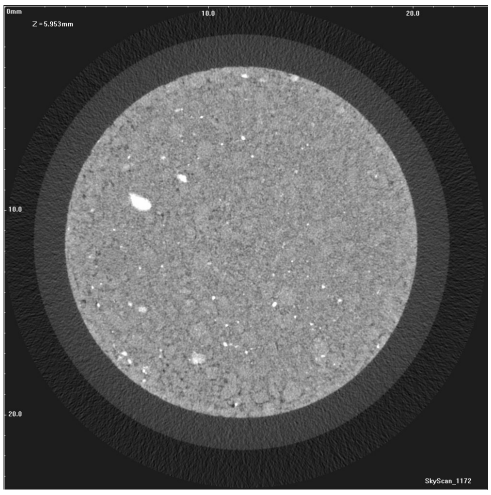
ρ_b [g/cm^3]	ρ_w [g/cm^3]	Harmaasävyarvo (KA)	Harmaasävyarvo (B)
1,59	0,372	141,9	142,8
1,53	0,324	137,6	138,4
1,67	0,381	146,0	147,2
1,66	0,340	145,0	146,0
1,66	0,317	143,3	144,2



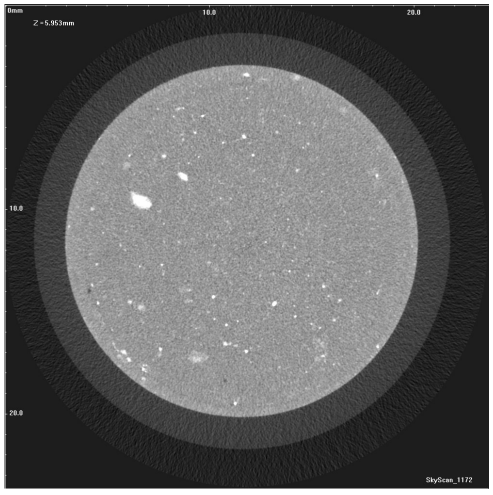
Kuva 21: Yhtälön (50) mukainen tason sovitus sekä varsinaisista kastelukokeista että kalibrointimittauksista saatuun dataan.



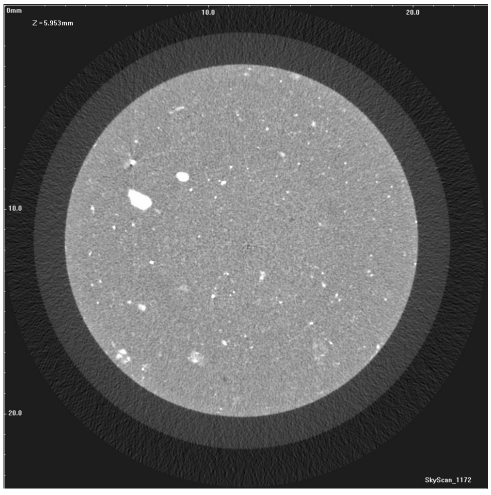
(a) Poikkileikkaus MX-80-näytteen rekonstruktiosta ennen kastelun aloittamista.



(b) Poikkileikkaus MX-80 näytteen rekonstruktiosta 12 tuntia kastelun aloittamisen jälkeen.



(c) Poikkileikkaus MX-80 näytteen rekonstruktiosta kolme vuorokautta kastelun aloittamisen jälkeen.



(d) Poikkileikkaus MX-80 näytteen rekonstruktiosta seitsemän vuorokautta kastelun aloittamisen jälkeen.

Kuva 22: Tutkimalla rekonstruktiossa näkyvien yksityiskohtien siirtymiä saadaan laskettua MX-80-näytteen muodonmuutoskentät eri ajanhetkillä.

4.4 Näytteen vesipitoisuuden määrittäminen

Yhtälön (50) perusteella näytteen veden osatiheyden muutos $\Delta\rho_\mathrm{w}$ deformoituneen ja referenssinäytteen välillä saadaan lausekkeesta

$$\begin{aligned}\Delta G &\equiv G_\mathrm{def} - G_\mathrm{ref} \\ &= \alpha_\mathrm{b}\Delta\rho_\mathrm{b} + \alpha_\mathrm{w}\Delta\rho_\mathrm{w},\end{aligned} \tag{52}$$

mistä saadaan

$$\Delta\rho_\mathrm{w} = \frac{\Delta G - \alpha_\mathrm{b}\Delta\rho_\mathrm{b}}{\alpha_\mathrm{w}}. \tag{53}$$

Näytteen vesipitoisuus ξ voidaan määrittää veden ja bentoniitin osatiheyksien suhteena, toisin sanoen

$$\xi = \frac{m_\mathrm{w}}{m_\mathrm{b}} = \frac{\rho_\mathrm{w}}{\rho_\mathrm{b}}, \tag{54}$$

ja vesipitoisuuden muutos $\Delta\xi$ on yhtälöiden (52) ja (54) nojalla

$$\Delta\xi = \frac{\Delta G - \alpha_{\mathrm{b}}\Delta\rho_{\mathrm{b}}}{\alpha_{\mathrm{w}}\rho_{\mathrm{b}}}, \tag{55}$$

missä

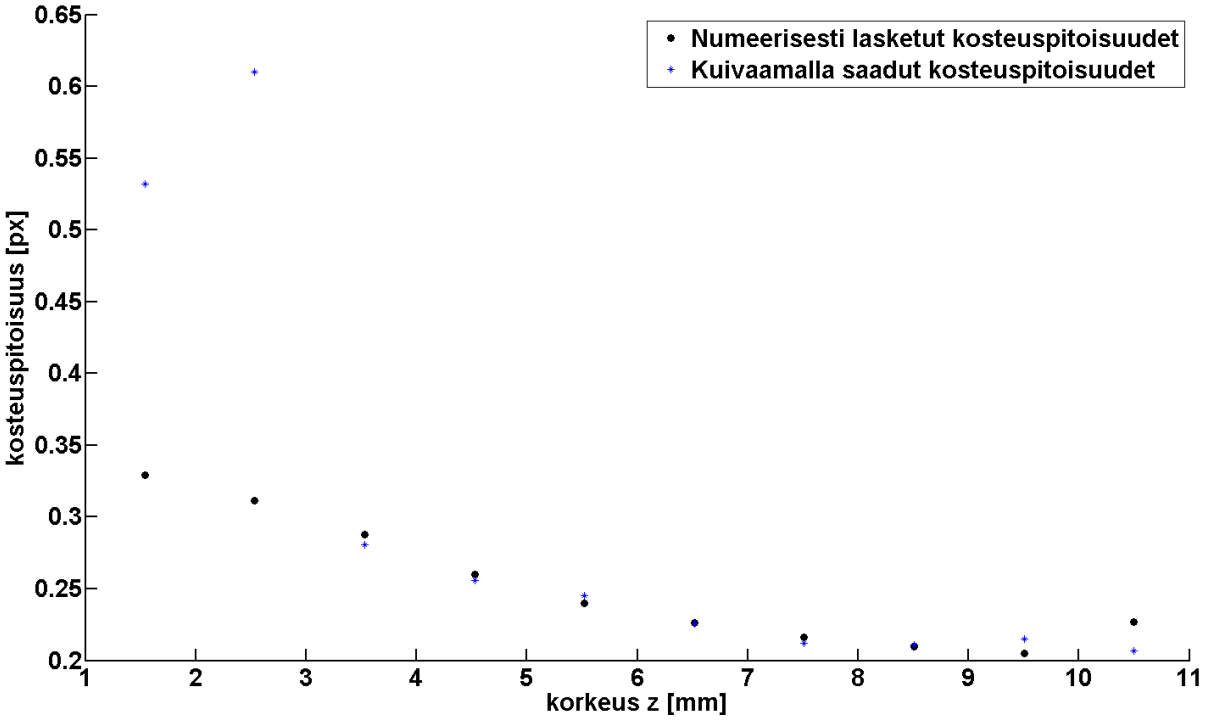
$$\Delta\rho_{\mathrm{b}}(\vec{r}) = -\rho_{\mathrm{b0}}\frac{\nabla\cdot\vec{u}_{\mathrm{b}}}{1+\nabla\cdot\vec{u}_{\mathrm{b}}}, \tag{56}$$

ja $\vec{u}_{\mathrm{b}} = \vec{u}_{\mathrm{b}}(\vec{r})$ on muodonmuutosten avulla saatu siirtymävektorikenttä [8]. Vesipitoisuuden laskemiseksi yhtälö (54) voidaan kirjoittaa yhtälöiden (50) ja (56) avulla muodossa

$$\xi = \frac{(1+\nabla\cdot\vec{u}_{\mathrm{b}})(G - C - \alpha_{\mathrm{b}}\rho_{\mathrm{b}})}{\alpha_{\mathrm{w}}\rho_{\mathrm{b0}}}, \tag{57}$$

sillä $\Delta\rho_{\mathrm{b}} = \rho_{\mathrm{b}} - \rho_{\mathrm{b0}}$. Numeerisen laskennan luotettavuutta yhtälön (57) tapauksessa arvioitiin skannaamalla MX-80-näyte ensin kuivana ja sitten noin vuorokauden kuluttua kastelun aloittamisesta. Tämän jälkeen näyte viipaloitiin sylinterin akselia vastaan kohtisuorassa suunnassa kymmeneen osaan ja viipaleiden vesipitoisuus määritettiin kuivaamalla ne 105°C:n lämpötilassa.

Vertaamalla kuivaamalla saatuja tuloksia numeerisesti laskettuihin havaitaan kuvan 23 perusteella, että näytteen keskellä kosteuspitoisuudet vastaavat hyvin toisiaan. Toisaalta näytteen reunoilla sekä numeerisesti laskettuihin tuloksiin että kuivaamalla saatuihin tuloksiin liittyy epävarmuutta: Kun näyte viipaloidaan, ei kaikki alkupunnituksessa mukana oleva vesi ole välttämättä imeytynyt näytteeseen, mikä voi selittää kuivaamalla saatujen tulosten korkeat kosteuspitoisuudet (53,2 % ja 61,0 %) näytteen alapäässä, josta kastelu tapahtui. Toisaalta myös siirtymien määrittämisestä näytteen reunalla voi aiheutua epävarmuutta, mikä vaikuttaa yhtälön (57) avulla laskettavaan kosteuspitoisuuteen.



Kuva 23: Numeerisesti lasketut ja kuivaamalla saadut MX-80-näytteen kosteuspitoisuudet eri osissa näytettä, kun kastelu tapahtui kohdasta $z = 0$.

Jotta näytteen vesipitoisuuden tutkiminen röntgentomografisin menetelmin olisi mahdollista, on näytteen kastumisen aiheutettava riittävän suuri muutos näytteen tiheydessä tai vaimenemiskertoimessa. Tällöin näytteessä kulkeutuvan veden aiheuttamat muutokset ovat röntgenkuvissa havaittavissa. Lisäksi veden kulkeutumisen oletetaan olevan niin hidasta, että noin 50 minuuttia kestävien skannausten aikana tilanne on lähes stationaarinen. [8]

5 TYÖN TULOKSET

5.1 Veden imeytyminen

Kuten luvussa 2.3 nähtiin, on veden kulkeutuminen bentoniitissa hyvin monimutkainen ilmiö, eikä suoravivasta jakoa konvektiivisen ja diffuusion kaltaisen kulkeutumisen välillä ole välttämättä edes mielekästä tehdä. Kuvassa 24 on kuitenkin esitettynä MX-80-näytteiden sitoman veden massa ajan funktiona. Kosteuspitoisuudessa ei ole huomioitu MX-80:n alkukosteutta, joka on noin 12,1 % (taulukko 5).

Jos oletetaan, että veden kulkeutuminen bentoniitissa tapahtuu puhtaasti konvektiolla, voidaan saatuun dataan sovittaa Darcyn laista (2) johdettu ratkaisu (8)

$$m(t) = a_0\sqrt{t}, \tag{58}$$

missä yhtälön (9) nojalla on oltava

$$t \leq \frac{\mu}{2\kappa p_0} l^2. \tag{59}$$

Lisäksi yhtälön (58) sovitusparametri a_0 sisältää yhtälön (8) mukaiset vakiotermit. Koska konvektiivinen kulkeutuminen pysähtyy, kun nesterintama saavuttaa näytteen toiseen pään, on yhtälön (58) mukainen sovitus tehty vain kahden ensimmäisen vuorokauden aikana mitattuun dataan. Tämä on perusteltua, sillä esimerkiksi kuvasta 26 nähdään, että jo ensimmäisen vuorokauden aikana nesterintama on kulkeutunut näytteen toiseen päähän.

Seitsemän tai 14 vuorokauden aikana mitattuun dataan on sovitettu puolestaan diffuusioyhtälön (18) sarjaratkaisun sata ensimmäistä termiä, toisin sanoen

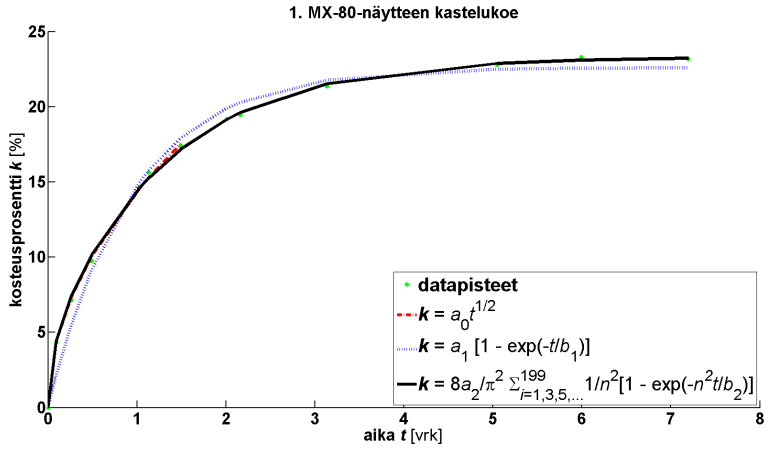
$$m(t) = \frac{8a_2}{\pi^2} \sum_{n=1,3,5\ldots}^{199} \frac{1}{n^2} \left[1 - \exp\left(-\frac{n^2 t}{b_2}\right)\right], \tag{60}$$

missä sovitusparametrit a_2 ja b_2 sisältävät yhtälössä (21) esiintyvät vakiotermit. Parametri b_2 voidaan tässä ymmärtää eräänlaisena aikavakiona, joka kuvaa, kuinka nopeasti näytteen vesipitoisuus saturoituu. Kuvasta 24 nähdään, että tämän sarjaratkaisun antama sovitus sopii hyvin kokeelliseen dataan. Myös sarjaratkaisua approksimoiva funktio

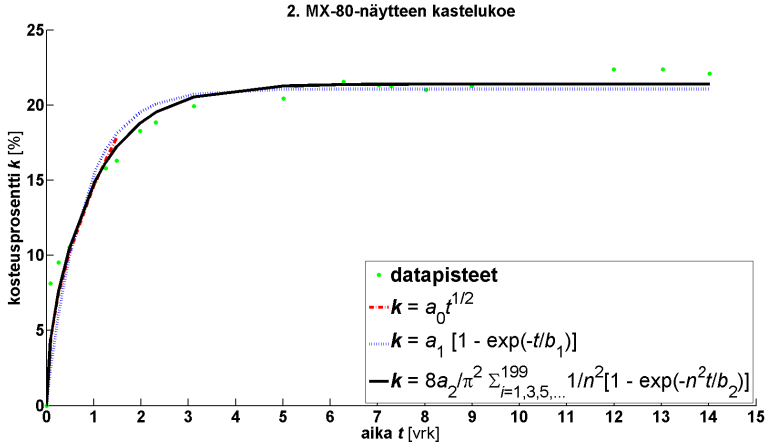
$$m(t) = a_1 \left[1 - \exp\left(-\frac{t}{b_1}\right)\right] \tag{61}$$

vastaa hyvin tehtyjä mittauksia.

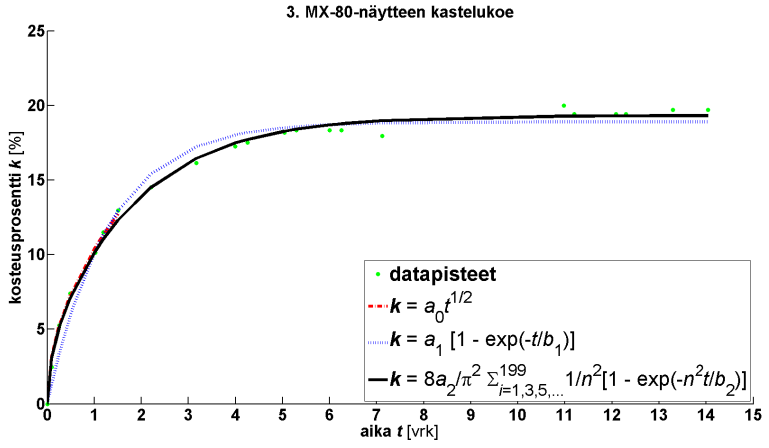
Eri näytteille saatujen sovitusparametrien arvot on koottu taulukkoon 10. Saatujen tulosten perusteella veden imeytyminen näytteeseen muistuttaa enemmän diffuusion kaltaista prosessia kuin konvektiota. Samankaltaisia tuloksia on saatu myös puhdistetulla bentoniitilla [9].



(a)



(b)

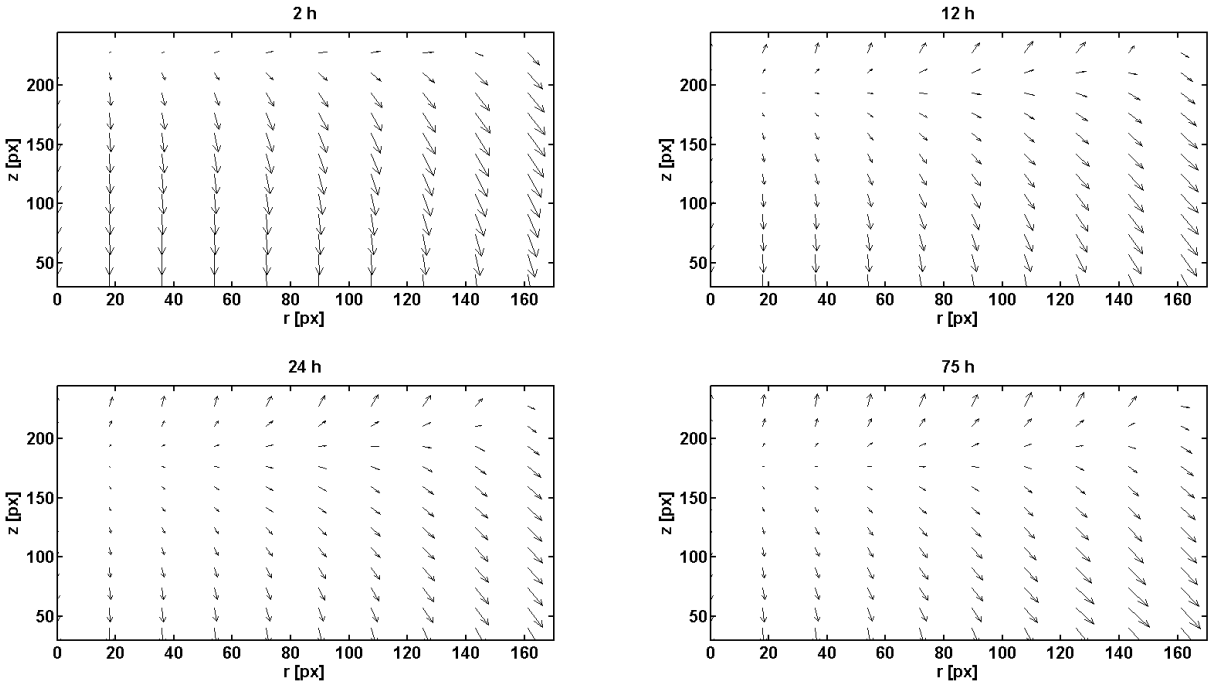


(c)

Kuva 24: Kolmen eri MX-80-näytteen kastelusta saatu data, johon on tehty yhtälöiden (58), (60) ja (61) mukaiset sovitukset.

Taulukko 10: Yhtälöiden (58), (60) ja (61) sovitusparametrien arvot eri MX-80-näytteille.

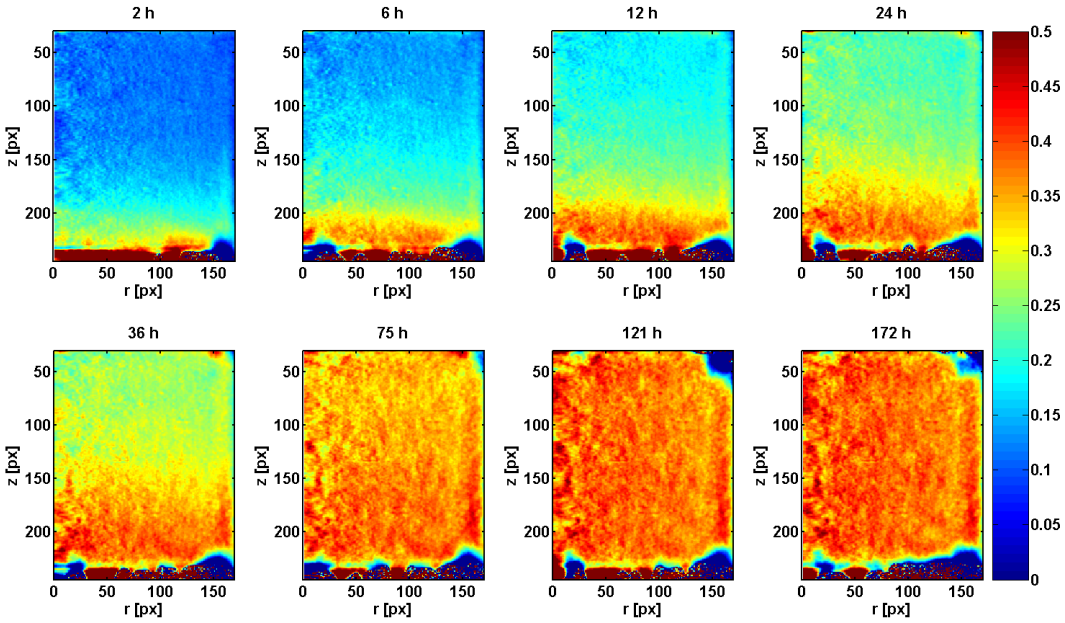
	1. näyte	2. näyte	3. näyte
a_0	14,36	14,61	10,38
a_1	22,60	21,07	18,90
b_1	0,95	0,76	1,30
a_2	23,35	21,45	19,36
b_2	1,32	1,04	1,87



Kuva 25: Ensimmäisen MX-80-näytteen muodonmuutoskentät eri ajanhetkillä atsimuuttikulman (2π) yli keskiarvoistettuna.

5.2 Muodonmuutokset

Ensimmäiselle MX-80-näytteelle numeerisesti lasketut muodonmuutoskentät ovat esitettynä kolmen ensimmäisen vuorokauden ajalta kuvassa 25. Muodonmuutoskentät on saatu keskiarvoistamalla mitattu data 2π:n suuruisen atsimuutikulman yli, jolloin saadut tulokset voidaan esittää kahdessa ulottuvuudessa. Vaikka muodonmuutoskentät näyttävät monimutkaisilta, löytyy eri näytteille lasketuista vektorikentistä myös systematiikkaa. Näin ollen muodonmuutosten laskemiseen käytetty translaatioalgoritmi toiminee ainakin jollain tarkkuudella, vaikka algoritmissa laskettavan neliösumman minimikohdan virheellisestä määrittämisestä voi aiheutua kuvaan vääristymiä [8].



Kuva 26: Ensimmäisen MX-80-näytteen kastelukokeesta numeerisesti atsimuuttikulman (2π) yli keskiarvona laskettu näytteen vesipitoisuuden jakautuminen eri ajanhetkillä.

5.3 Kosteuspitoisuudet

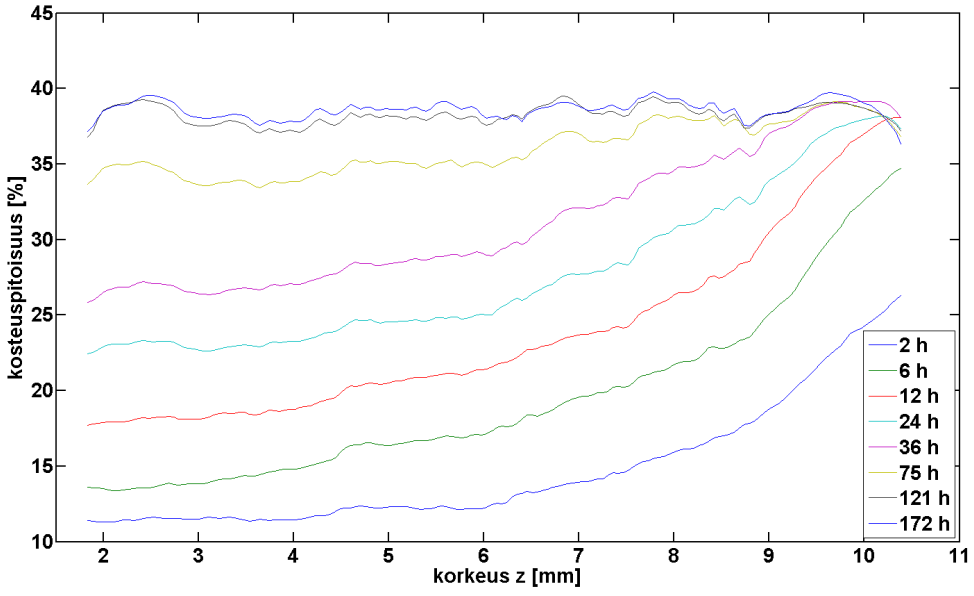
Ensimmäiseen MX-80-näytteeseen sitoutuneen veden jakautuminen atsimuuttikulman yli keskiarvoistettuna on esitettynä kuvassa 26. Näytteen kastelu on aloitettu kuvien alareunasta. Saatujen tulosten perusteella veden kulkeutumisessa ei ole nähtävissä konvektiiviselle kulkeutumiselle tyypillistä selkeää nesterintamaa, joka näytteessä etenisi. Sen sijaan saturoituneessakin tilassa näytteen keskiarvoistettu kosteuspitoisuus on epähomogeeninen, mikä nähdään tarkastelemalla kosteusprofiilia viiden (121 h) ja seitsemän (172 h) vuorokauden kuluttua kastelun aloittamisesta. Numeerisesti yhtälön (54) perusteella määritetyt näytteen keskimääräiset kosteuspitoisuudet on esitettynä taulukossa 11. Kosteuspitoisuuden keskiarvon laskemisessa näytteen ylä- ja alareunasta jätettiin noin millimetrin paksuinen viipale huomioimatta, koska esimerkiksi kuvan 26 perusteella niiden alueiden kosteuspitoisuuden määrittämiseen liittyi muita enemmän epävarmuutta. Ensimmäisen MX-80-näytteen yksiulotteiset kosteusprofiilit on esitettynä kuvassa 27; keskiarvoistus on tehty sekä 2π:n suuruisen atsimuuttikulman että näytteen säteen yli huomioimatta näytteen reunoja.

5.4 Voima-anturimittaukset

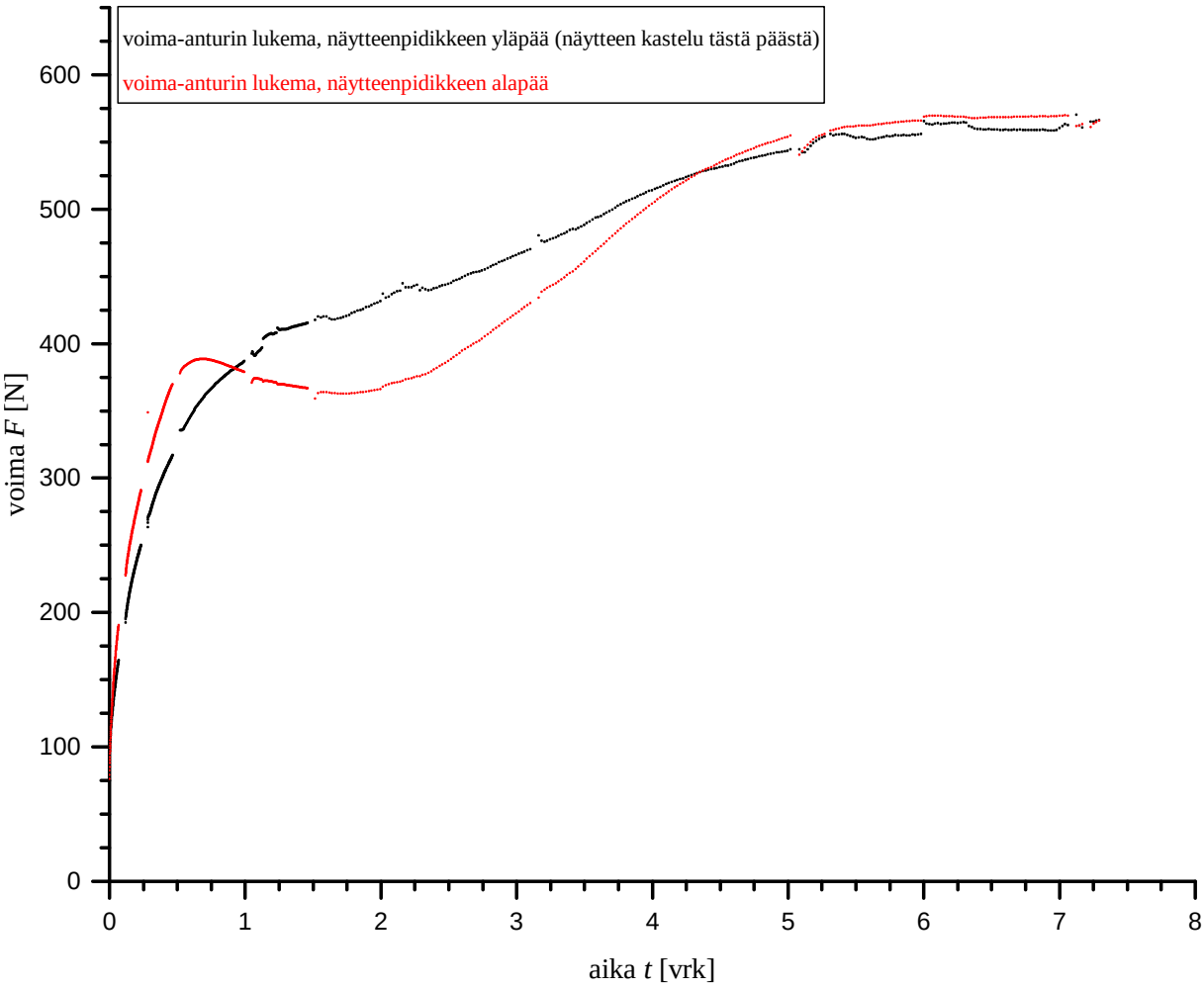
Kuvassa 28 on esitettynä ensimmäisen MX-80-näytteen kohdistama voima näytteenpitimen ylä- ja alareunaan seitsemän vuorokauden ajalta. Kuvasta nähdään, että näytteenpitimen reunoihin kohdistuu tietyn suuruinen alkujännitys, minkä jälkeen sekä ylä- että alareunaan kohdistuva voima kasvaa noin viiden ensimmäisen vuorokauden ajan. Ensimmäisen vuorokauden ajan sekä näytteenpitimen ylä- että alareunaan kohdistuva voima kasvaa nopeasti, minkä jälkeen näytteenpitimen alapäähän kohdistuva voima lähtee hetkellisesti pienenemään saavuttaen lokaalin miniminsä noin kahden vuorokauden kuluttua kastelun aloittamisesta. Yläpäähän kohdistuva voima sen sijaan kasvaa ensimmäisen vuo-

Taulukko 11: Ensimmäisen MX-80-näytteen numeerisesti määritetyt keskimääräiset kosteuspitoisuudet.

aika kastelun aloittamisesta [h]	kosteuspitoisuus [%]
2	12,7
6	16,7
12	20,7
24	24,0
36	27,6
75	31,7
121	33,1
172	33,5



Kuva 27: Ensimmäisen MX-80-näytteen kastelukokeesta numeerisesti atsimuuttikulman (2π) ja säteen yli keskiarvona laskettu näytteen vesipitoisuuden jakautuminen näytteen korkeuden funktiona eri ajanhetkillä.



Kuva 28: Ensimmäisen MX-80-näytteen kohdistama voima näytteenpitimen ylä- ja alareunaan ajan funktiona seitsemän vuorokauden ajalta.

rokauden jälkeen lähes lineaarisesti noin neljä vuorokautta. Erot näytteenpitimen ylä- ja alapään paisuntapaineissa selittyvät luultavasti MX-80-näytteen ja näytteenpitimen välisillä kitkavoimilla sekä paisumisen aiheuttamilla jännityksillä, jotka välillä laukeavat.

Vertaamalla voima-anturimittauksesta saatuja tuloksia kuvassa 25 oleviin muodonmuutoskenttiin havaitaan, että näytteessä tapahtuvat muodonmuutokset ovat ensimmäisen vuorokauden ajan suuria, minkä jälkeen siirtymät alkavat pienentyä. Tämän perusteella voidaan selittää ainakin osittain voimamittauksessa saatua dataa. Myös kuvassa 26 olevia näytteen vesipitoisuuksia tarkastelemalla nähdään, että kosteusprofiili muuttuu ensimmäisten vuorokausien aikana nopeasti tilanteen alkaessa stabiloitua viidennen vuorokauden kohdalla.

Kun vielä verrataan voima-anturimittausten saturaatiotasoa kuvassa 24 esitettyjen diffuusiokäyrien ”aikavakioihin” b_1 ja b_2, nähdään taulukkoon 12 koottujen tulosten perusteella saturaatiotasojen ja aikavakioiden välillä korrelaatiota. Mitä suurempi alkujännitys MX-80-näytteelle annetaan, sitä suurempi on saturaatiotilanteessa oleva voima, jonka näyte pitimeen kohdistaa, ja sitä nopeammin myös diffuusiokäyrät saturoituvat.

Taulukko 12: Eri MX-80-näytteiden kohdistama voima näytteenpitimen yläreunaan saturaatiotilanteessa ja kuvassa 24 esitettyjen diffuusiokäyrien vakioiden b_1 ja b_2 arvot.

	1. näyte	2. näyte	3. näyte
voima, saturaatiossa	560 N	630 N	500 N
b_1 (approksimaatio)	0,95	0,76	1,30
b_2 (sarjaratkaisu)	1,32	1,04	1,87

6 JOHTOPÄÄTÖKSET

Työn tavoitteena oli toisaalta selvittää, millä reunaehdoilla puhdistetulle bentoniitille kehitetyt röntgenmikrotomografiset menetelmät soveltuvat MX-80-tyyppisen bentoniitin tutkimiseen aineiden erilaisista mikro- ja makrorakenteista huolimatta. Toisaalta jos sopivilla reunaehdoilla aiemmin kehitettyjä kokeellisia menetelmiä voidaan käyttää myös MX-80-tyyppiselle bentoniitille, oli tavoitteena tutkia veden kulkeutumista ja muodonmuutoksia MX-80:ssa. Työstä saatua kokeellista dataa apuna käyttäen MX-80-tyyppisen bentoniitin käyttäytymisestä pyritään laatimaan numeerisia malleja, joita voidaan hyödyntää ennustettaessa MX-80:n pitkän aikavälin käyttäytymistä kallioperässä, jos bentoniittipuskuria tullaan käyttämään käytetyn ydinpolttoaineen loppusijoituksessa.

Tarkastelemalla yleisesti työn tuloksia nähdään, että puhdistetulle bentoniitille kehitetyt röntgenmikrotomografiset menetelmät soveltuvat hyvin myös rakeisemman MX-80-tyyppisen bentoniitin tutkimiseen. Merkittävänä erona puhdistetulla bentoniitilla tehtyihin mittauksiin oli, että tässä työssä tomografialaitteiston kalibroinnissa käytettiin perinteisen taustakuvakorjauksen lisäksi myös luvussa 3.4.3 kuvattua dynaamista taustakuvakorjausta. Dynaamisen taustakuvakorjauksen avulla eri ajanhetkillä tehdyt mittaukset saatiin aiempaa vertailukelpoisemmiksi keskenään.

Saatujen tulosten perusteella veden imeytyminen MX-80-tyyppiseen bentoniittiin muistuttaa enemmän diffuusion kaltaista prosessia kuin konvektiota. Vastaavanlaisia tuloksia on saatu myös puhdistetulle bentoniitille [9]. Toisaalta saatujen tulosten perusteella kastumisen alkuvaiheessa myös veden konvektiivisen kulkeutumisen malli huokoisessa MX-80:ssa vastaa hyvin kokeellisia tuloksia. Onkin mahdollista, että erityisesti ensimmäisten tuntien ja jopa vuorokausien aikana veden kulkeutuminen MX-80:ssa on diffundoitumisen ja konvektiivisen kulkeutumisen superpositio.

Muodonmuutosten määrittämiseksi ei MX-80-tyyppiseen bentoniittiin tarvinnut lisätä erityisiä merkkipartikkeleita toisin kuin puhdistettuun bentoniittiin. MX-80:ssa olevat silikaattimineraalit kuten kvartsi eivät juurikaan reagoineet näytteen kastumiseen, joten vaikka näyte muuttui kastuessaan varsin homogeeniseksi, voitiin deformoituneen näytteen siirtymiä referenssinäytteeseen verrattuna määrittää inerttejä partikkeleita apuna käyttäen. Erityisesti näytteen keskellä muodonmuutoskenttä näyttää kvalitatiivisen tarkastelun perusteella järkevältä. Näytteen reunoilla muodonmuutosten määrittämiseen sisältyy enemmän epävarmuutta jo käytetystä menetelmästä johtuen, jos vertailualueen reunat ulottuvat MX-80-näytteen ulkopuolelle.

MX-80-näytteen vesipitoisuuden numeerisen määrittämisen luotettavuutta voitiin testata yksinkertaisesti viipaloimalla ja kuivaamalla kasteltu MX-80-näyte ja vertaamalla saatuja tuloksia numeerisesti laskettuihin. Tässä tapauksessa sekä kvantitatiivisen että kvalitatiivisen tulosten tarkastelun perusteella vesipitoisuuden määrittäminen MX-80-näytteistä onnistui hyvin näytteen keskeltä. Kaksiulotteisessa tarkastelussa näytteen reunojen vesipitoisuudesta on kuitenkaan lähes mahdotonta sanoa mitään varmaa tässä työssä tehdyn analyysin perusteella.

Voima-anturimittausten tulokset olivat kaikille kolmelle näytteelle samansuuntaiset, ja saturoituminen tapahtui kaikille näytteille noin viiden vuorokauden kuluessa kastelun aloittamisesta. Saturaatiotaso vaihteli hieman näytteestä toiseen, mitä voi selittää sillä, että MX-80-näytteille annettu alkujännitys vaihteli jonkin verran näytteestä toiseen. Voima-anturimittausten perusteella MX-80:n paisuntapaineet näytteen ylä- ja alapäässä eroavat toisistaan erityisesti mittauksen alkuvaiheessa, jolloin paisumispaine kasvaa voimakkaasti ajan funktiona. Erot mittaustulosten välillä voivat johtua esimerkiksi näytteenpitimen putken ja MX-80-näytteen välisistä kitka- ja jännitysvoimista.

Kaiken kaikkiaan sekä puhdistetulle bentoniitille että MX-80:lle saadun kokeellisen datan kvantitatiivinen virheanalyysi on haastavaa, sillä referenssituloksia tai -menetelmää ei ole. Kolmelle eri näytteelle mitattujen tulosten perusteella käytettyjä kokeellisia menetelmiä voidaan kuitenkin pitää sikäli luotettavina, että eri näytteille mitatut tulokset ovat pitkälti samankaltaisia.

LÄHTEET

[1] `http://www.posiva.fi/loppusijoitus`. luettu 20.07.2015.

[2] `http://www.stuk.fi/sateilyn-hyodyntaminen/fi_FI/kayttokohteita/`. luettu 02.07.2015.

[3] *SkyScan 1172: Desktop X-ray Microtomograph Instruction Manual.* Skyscan N.V., Belgium, 2005.

[4] B. De Man, J. Nuyts, P. Dupont, G. Marchal ja P. Suetens. Metal streak artifacts in X-ray computed tomography: A simulation study. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 1999. DOI: 10.1109/23.775600.

[5] P. Delage, D. Marcial, Y. J. Cui ja X. Ruiz. Ageing effects in compacted bentonite: a microstructure approach. *Géotechnique*, Volume 56, Issue 5, 2006.

[6] F. A. L. Dullien. *Porous Media: Fluid Transport and Pore Structure.* Academic Press, Inc, San Diego, California, 1979.

[7] L. A. Feldkamp, L. C. Davis ja J. W. Kress. Practical cone-beam algorithm. *The Jounal of the Optical Society of America*, Volume 1, Number 6, 1984.

[8] T. Harjupatana, J. Alaraudanjoki ja M. Kataja. X-ray tomographic method for measuring three-dimensional deformation and water content distribution in swelling clays. *Applied Clay Science*, 2015.

[9] T. Harjupatana. Veden kulkeutumisen ja muodonmuutosten mittaaminen bentoniittinäytteissä röntgentomografiamenetelmällä. Pro gradu, Jyväskylän yliopisto, Jyväskylä, 2012.

[10] J. H. Hubbell ja S. M. Seltzer. *Tables of X-ray Mass Attenuation Coefficients and Mass Energy-Absorption Coefficients from 1 keV to 20 MeV for Elements Z = 1 to 92 and 48 Additional Substances of Dosimetric Interest.* 2012. saantitapa: `http://www.nist.gov/pml/data/xraycoef/`, luettu 7.7.2015.

[11] J. Johansson. Tomografiamenetelmän käänteisongelman ratkaisusta. Pro gradu, Turun yliopisto, Turku, 2007.

[12] P. M. Joseph ja R. D. Spital. The exponential edge-gradient effect in x-ray computed tomography. *Physics in Medicine and Biology*, Volume 26, Number 3, 1981.

[13] A. C. Kak ja M. Slaney. *Principles of Computerized Tomographic Imaging.* IEEE Press, 1999. saantitapa: `http://www.slaney.org/pct/pct-toc.html`, luettu 24.7.2015.

[14] O. Karnland, S. Olsson ja U. Nilsson. Mineralogy and sealing properties of various bentonites and smectite-rich clay materials. *Techical Report, TR-06-30*, 2006.

[15] L. J. Klinkenberg. The permeability of porous media to liquids and gases, drilling and production practive. *Am. Petrl. Inst.*, 1941.

[16] V. Koivu. *Analysis of Fluid Flow Through Porous Media Based on X-ray Microtomograpic Reconstructions.* Väitöskirja, University of Jyväskylä, Jyväskylä, 2010.

[17] A. Koponen, M. Kataja ja J. Timonen. Permeability and effective porosity of porous media. *Physical Review E*, Volume 56, Number 3, 1996.

[18] T. Kozaki, S. Suzuki, N. Kozai, S. Sato ja H. Ohashi. Observation of microstructures of compacted bentonite by microfocus X-ray computerized tomography (Micro-CT). *Nuclear Science and Technology*, Volume 38, Number 8, 2001.

[19] A. C. Liakopoulos. Darcy's coefficient of permeability as symmetric tensor of second rank. *International Association of Scientific Hydrology. Bulletin*, 1965.

[20] M. Snellman, Posiva Oy. Käytetty simuloidun Allard-pH-7-veden resepti 1L varten. faksi, päivätty 10.7.1997.

[21] F. Natterer. *The mathematics of Computerized Tomography.* Society for Industrial and Applied Mathematics (SIAM), 2001.

[22] M. Olin et al. *Bentoniittipuskurin kytketty käyttäytyminen, PUSKURI-hankkeen tuloksia.* VTT, 2011.

[23] Posiva Oy. *Olkiluodon ja Loviisan voimalaitosten ydinjätehuolto: Selvitys suunnitelluista toimenpiteistä ja niiden valmistelusta vuosina 2010-2012.* 2009. saantitapa: `http://www.posiva.fi/files/1001/TKS_2009_web_r1.pdf`, luettu 11.8.2015.

[24] R. Pusch. The microstructure of MX-80 clay with respect to its bulk physical properties under different environmental conditions. *Techical Report, TR-01-08*, 2001.

[25] E. Rautioaho ja L. Korkiala-Tanttu. *Bentomap: Survey of bentonite and tunnel backfill knowledge, State-of-the-art.* VTT, 2009.

[26] M. Salo. Ihmisen uudet silmät – käänteisten ongelmien matematiikkaa. *Matematiikkalehti Solmu*, Matematiikan ja tilastotieteen laitos, Helsingin yliopisto, 3/2011.

[27] A. Seiphoori, A. Ferrari ja L. Laloui. An insight into the water retention behaviour of MX-80 granular bentonite. 2014.

[28] J. Sijbers ja A. Postnov. Reduction of ring artefacts in high resolution micro-CT reconstructions. *Physics in Medicine and Biology*, Volume 49, Number 14, 2004.

[29] S. W. Smith. *The scientist and engineer's guide to digital signal processing.* saantitapa: `http://www.dspguide.com`, luettu 24.7.2015.

[30] Säteilyturvakeskus, STUK. *Säteily- ja ydinturvallisuus -kirjasarja, osa 3: Säteilyn käyttö.* Hämeenlinna, 2004. saantitapa: `http://www.stuk.fi/julkaisut_maaraykset/kirjasarja/fi_FI/kirjasarja3/_files/12222632510021001/default/kirja3_1.pdf`, luettu 14.7.2015.

[31] S. R. Stock. *Microcomputed Tomography: Methodology and Applications.* CRC Press, 2009.

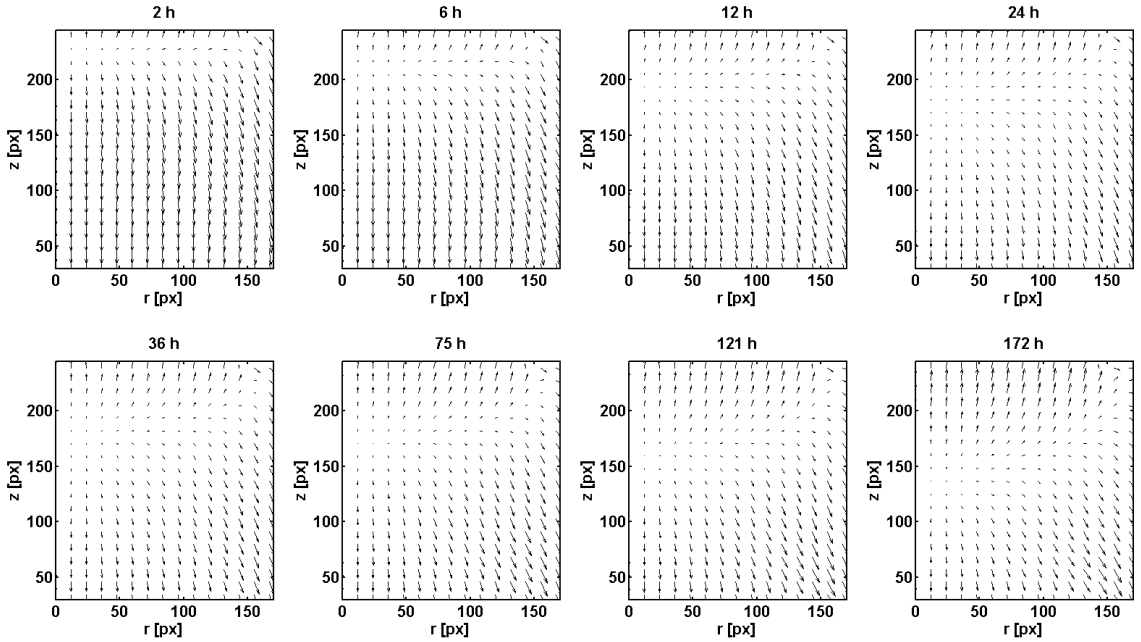
[32] S. Tomioka et al. Analysis of microstructural images of dry and water-saturated compacted bentonite samples observed with X-ray micro CT. *Applied Clay Science*, 2010.

[33] Weidong He, Weiqiang LV ja J. H. Dickerson II. *Gas Transport in Solid Oxide Fuel Cells*. Springer, New York, 2014.

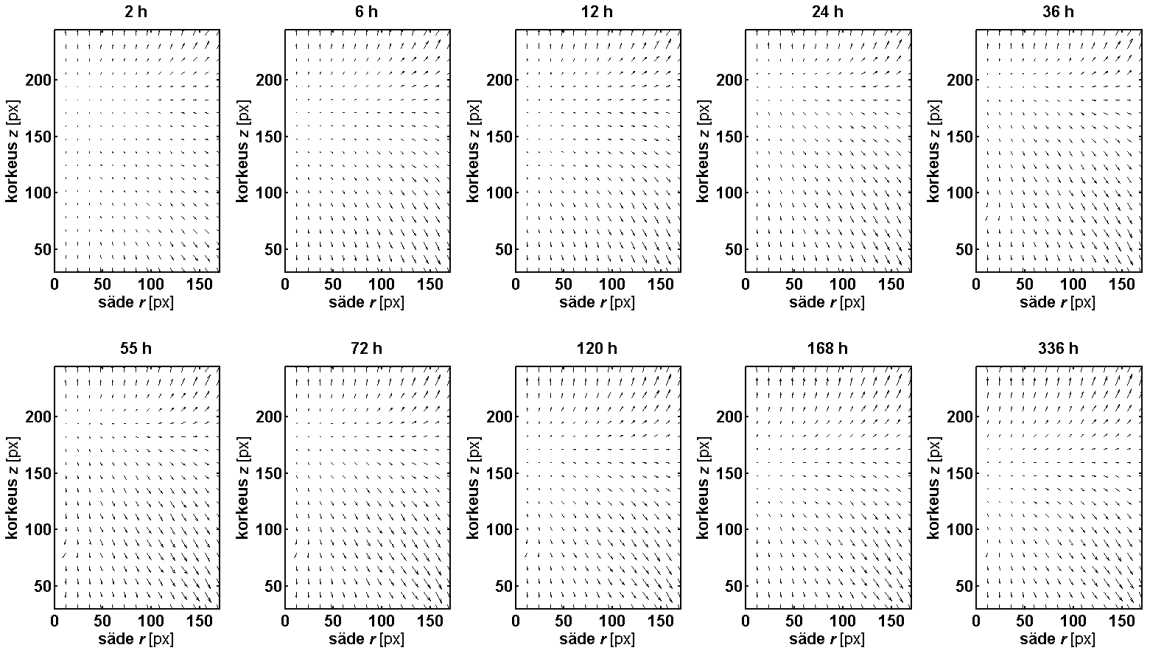
[34] Yu-Shu Wu, K. Pruess ja P. Persoff. Does klinkenberg's law survice upscaling? *Transport in Porous Media 32, 117-137*, Kluver Academic Publishers, 1998.

A LIITTEET

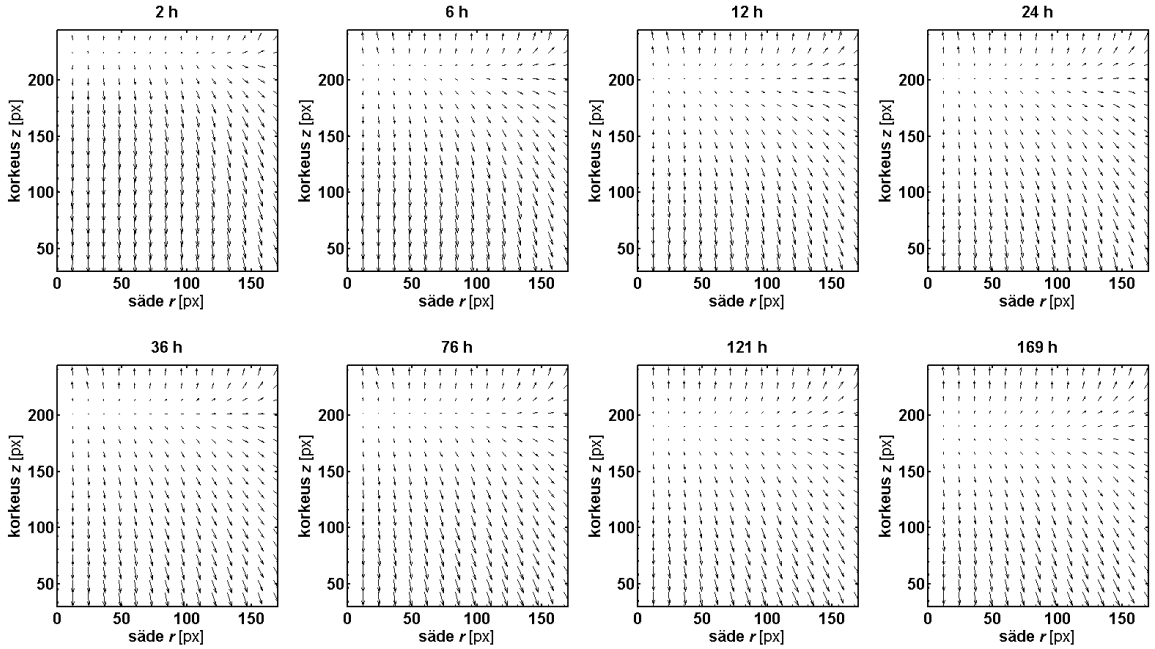
Tuloksia



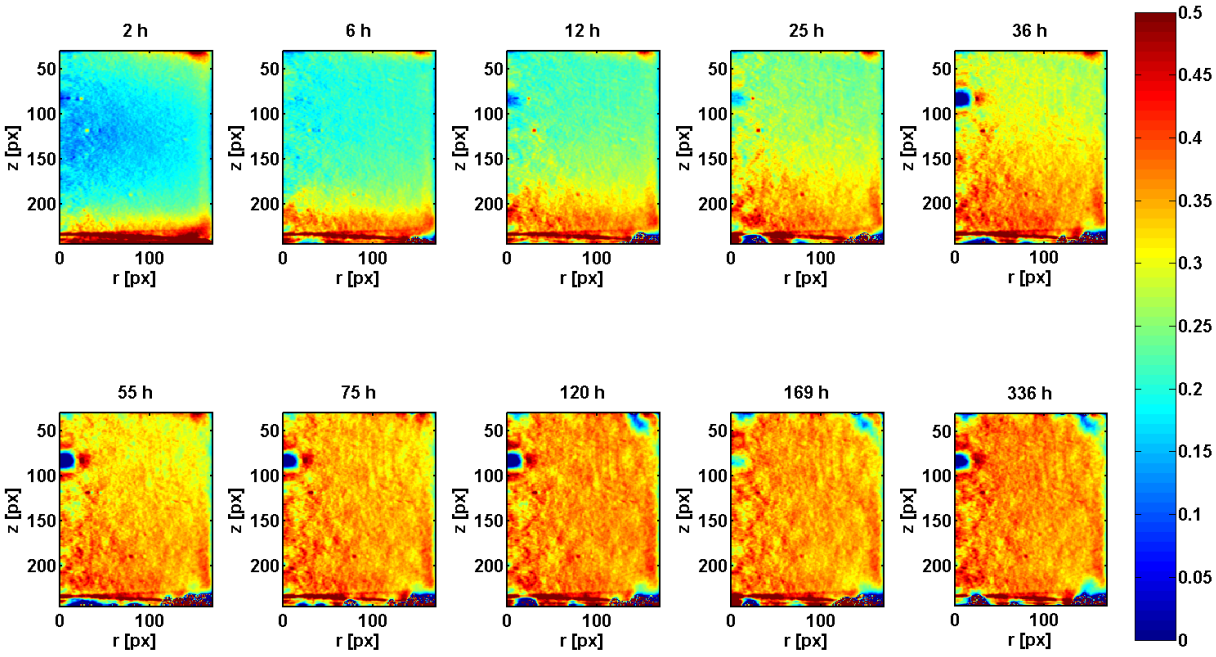
Kuva 29: Ensimmäisen MX-80-näytteen muodonmuutoskentät eri ajanhetkillä atsimuuttikulman (2π) yli keskiarvoistettuna



Kuva 30: Toisen MX-80-näytteen muodonmuutoskentät skaalattuna tekijällä 1,5 eri ajanhetkillä atsimuuttikulman (2π) yli keskiarvoistettuna



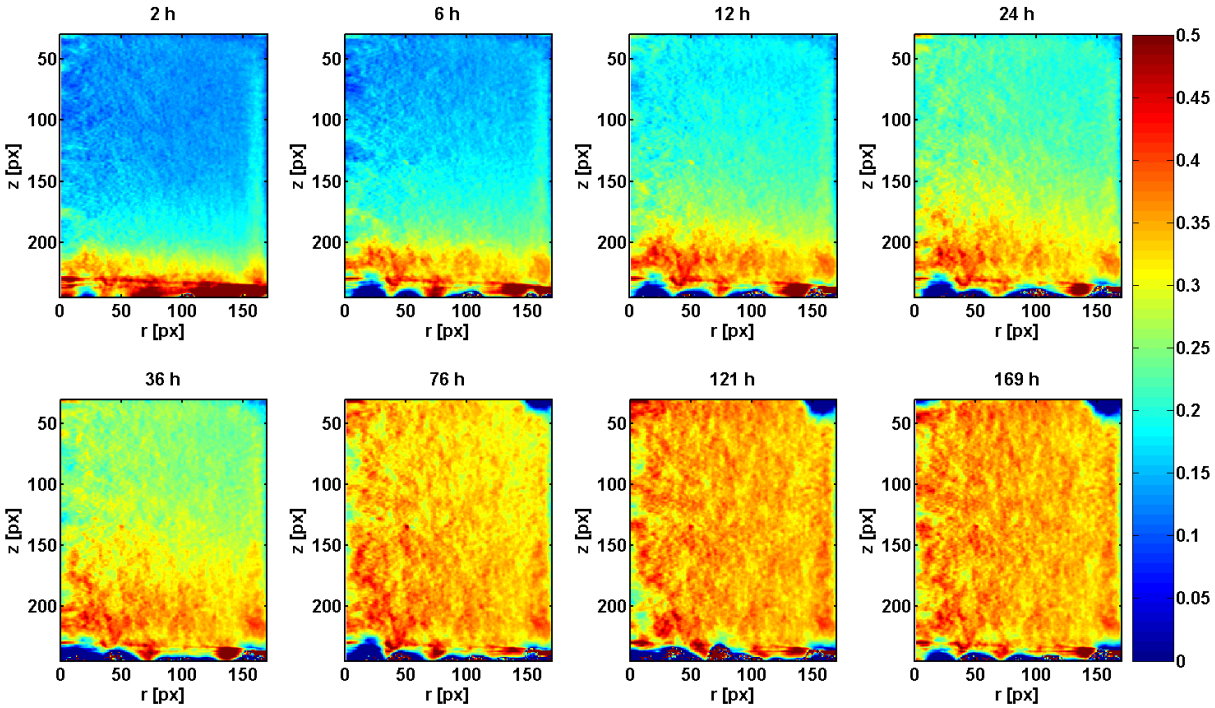
Kuva 31: Kolmannen MX-80-näytteen muodonmuutoskentät eri ajanhetkillä atsimuuttikulman (2π) yli keskiarvoistettuna



Kuva 32: Toisen MX-80-näytteen kastelukokeesta numeerisesti atsimuuttikulman (2π) yli keskiarvona laskettu näytteen vesipitoisuuden jakautuminen eri ajanhetkillä.

Taulukko 13: Toisen MX-80-näytteen numeerisesti määritetyt keskimääräiset kosteuspitoisuudet.

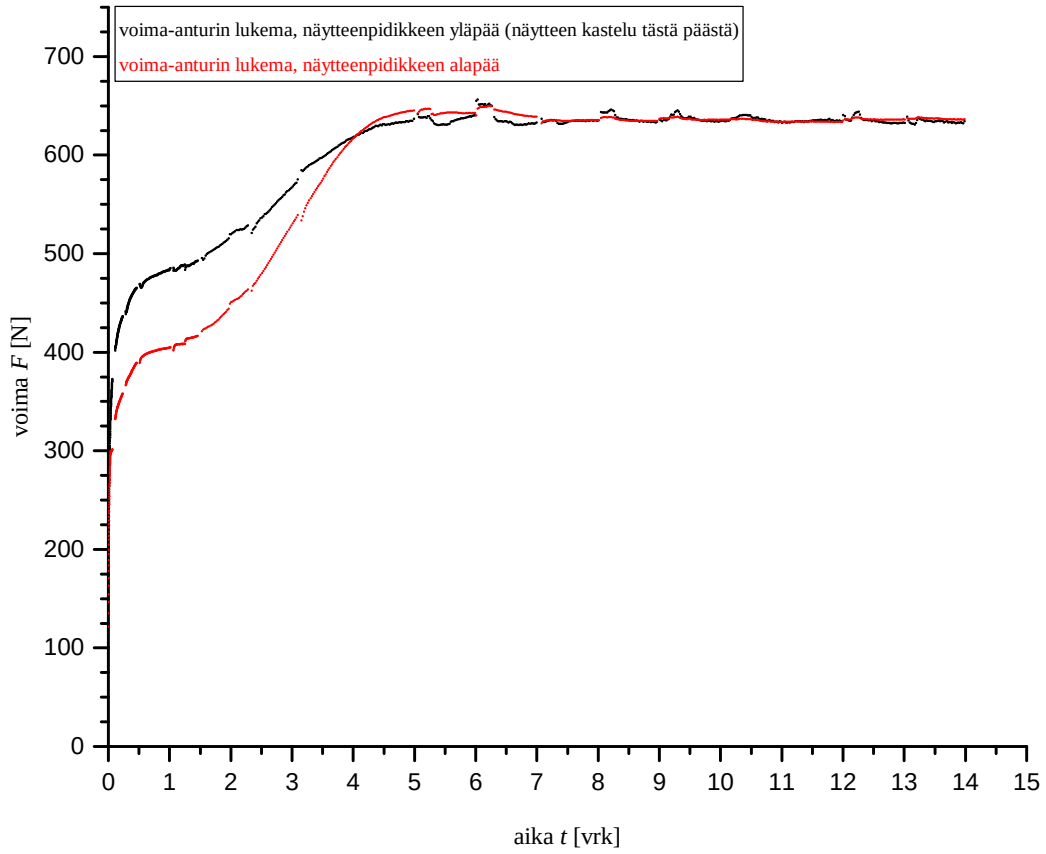
aika kastelun aloittamisesta [h]	kosteuspitoisuus [%]
2	17,7
6	20,7
12	23,2
24	25,5
36	27,8
55	28,4
72	30,3
120	31,5
168	29,7
336	31,3



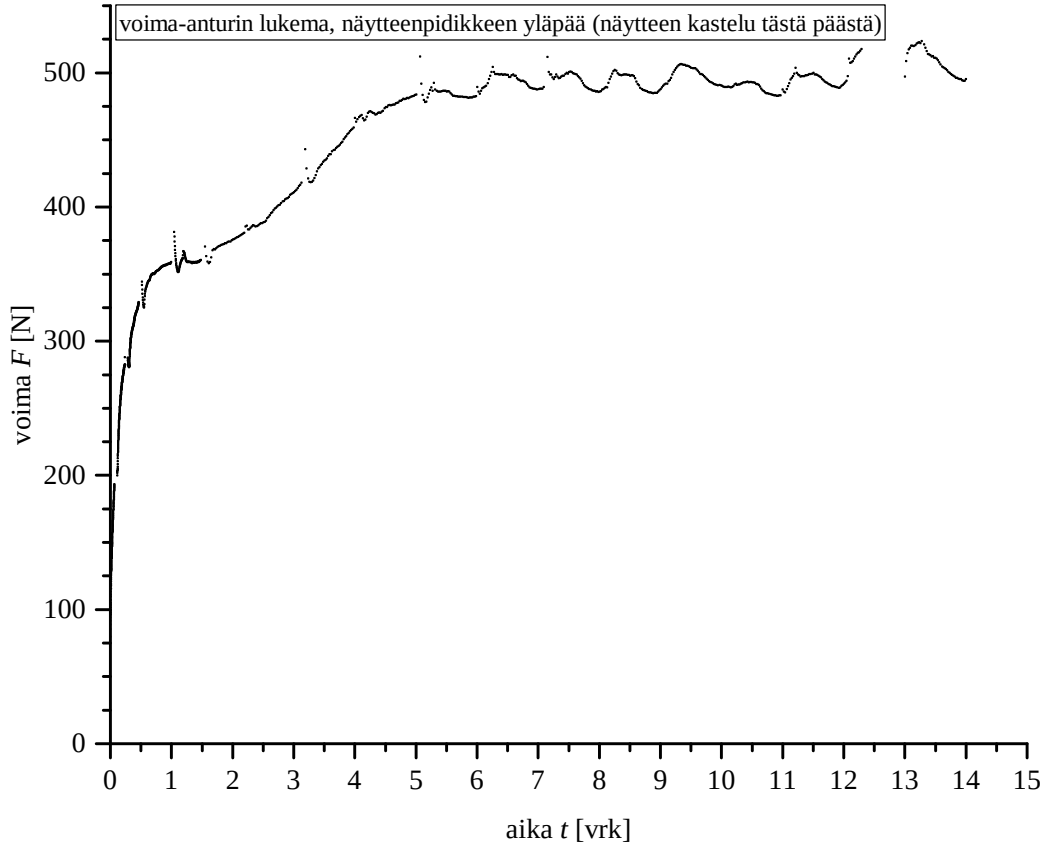
Kuva 33: Kolmannen MX-80-näytteen kastelukokeesta numeerisesti atsimuuttikulman (2π) yli keskiarvona laskettu näytteen vesipitoisuuden jakautuminen eri ajanhetkillä.

Taulukko 14: Kolmannen MX-80-näytteen numeerisesti määritetyt keskimääräiset kosteuspitoisuudet.

aika kastelun aloittamisesta [h]	kosteuspitoisuus [%]
2	13,9
6	16,5
12	19,8
24	22,1
36	25,5
76	29,2
121	30,1
169	29,8



Kuva 34: Toisen MX-80-näytteen kohdistama voima näytteenpitimen ylä- ja alareunaan ajan funktiona 14 vuorokauden ajalta.



Kuva 35: Kolmannen MX-80-näytteen kohdistama voima näytteenpitimen yläreunaan ajan funktiona 14 vuorokauden ajalta.