

This is a self-archived version of an original article. This version may differ from the original in pagination and typographic details.

Author(s): Harjupatana, Tero

Title: Röntgenkuvantamisesta apua bentoniittipuskurin mallintamiseen

Year: 2024

Version: Published version

Copyright: © Suomen Atomiteknillinen Seura - Atomtekniska Sällskapet i Finland ry

Rights: In Copyright

Rights url: <http://rightsstatements.org/page/InC/1.0/?language=en>

Please cite the original version:

Harjupatana, T. (2024). Röntgenkuvantamisesta apua bentoniittipuskurin mallintamiseen. *ATS ydintekniikka*, 53(3), 27-30.

https://bin.yhdistysavain.fi/1608821/7LjC5cldcpr7BgHOat4D0bAXj8/ATS%20Ydintekniikka_3-2024.pdf

Väitös: Röntgenkuvantamisesta apua bentoniittipuskurin mallintamiseen

Tero Harjupatana
Jyväskylän yliopisto

Väitöstyössä kehitettiin menetelmä veden kulkeutumisen ja muodonmuutoksen mittaamiseen paisuvissa materiaaleissa. Menetelmässä näytteen kastumista seurataan sopivin väliajoin otettujen röntgen- tai röntgentomografiakuvien avulla. Erilaisia kuvakorjaus- ja kuva-analyysitekniikoita käyttämällä lopullisina tuloksina saadaan kiintoaineen ja veden tiheysjakaumat sekä siirtymävektorikentät ajan funktiona. Menetelmän tärkeimpänä sovelluskohteena oli ydinjätteen loppusijoituksessa puskuriaineena käytettävä bentoniitti. Menetelmällä tuotettu yksityiskohtainen tieto auttaa mallintamaan puskuria ja siten arvioimaan loppusijoituskonseptin kokonaisturvallisuutta.

In this dissertation, a method for measuring water transport and deformation in swelling materials was developed. In the method, the wetting of a sample is monitored by taking X-ray or X-ray tomographic images at suitable intervals. By using various image correction and analysis techniques, the density distributions of solid and water and the displacement fields as a function of time are obtained as the final results. The most important application of the method was bentonite, a buffer material used in nuclear waste disposal. The detailed data produced by the method help to model the buffer, and thus to assess the overall safety of the disposal concept.

Korkea-aktiivisen ydinjätteen loppusijoitus alkaa lähivuosina Suomessa, ensimmäisenä maailmassa. Loppusijoituksessa käytettävän moniesteperiaatteen tarkoituksena on eristää jätteet mahdollisimman hyvin elollisesta luonnosta. Peruskallion ja ydinjättekapselin välisellä bentoniittipuskurilla on merkittävä rooli, sillä sen tehtävänä on suojella kanisteria pohjavedeltä ja kallioliikunnoilta sekä hidastaa radionuklidien vapautumista, mikäli kanisteri rikkoutuu. Bentoniitti on tähän tarkoitukseen sopiva materiaali, sillä se läpäisee heikosti vettä, on muovautuvaa ja veden vaikutuksesta paisuvana materiaalina se täyttää ja tiivistää rakoja.

Veden kulkeutumisen ja bentoniitin mekaanisen käyttäytymisen luotettava mallintaminen on tärkeää puskurin toimintakyvyn arvioimiseksi. Bentoniitti on kuitenkin osoittautunut haastavaksi materiaaliksi mallintaa, sillä sen rakenne ja vuorovaikutukset veden kanssa ovat monimutkaisia. Haastavuutta lisäävät kulkeutumiseen ja käyttäytymiseen vaikuttavat monet tekijät, kuten bentoniitin koostumus ja tiheys, pohjaveden suolapitoisuus ja paine sekä lämpötila.

Mallien kehittämistä varten tarvitaan siten yksityiskohtaista ja kattavaa kokeellista aikasarjatietoa veden kulkeutumisesta ja muodon-

muutoksesta bentoniitissa. Tällaisen tiedon tuottamiseen paisuville materiaaleille ei kuitenkaan ole ollut käytännöllisiä menetelmiä. Tässä väitöstyössä kehitettiin näytettä rikkomattomaan röntgenkuvantamiseen perustuva menetelmä, jotta puuttuvaa tietoa saadaan tuotettua mallinnusta varten. Menetelmää sovellettiin pääasiassa bentoniittinäytteisiin mutta myös biokomposiittimateriaaliin.

Röntgenkuvantaminen

Perinteinen röntgenkuvantaminen perustuu röntgensäteilyn vaimennamiseen materiaalissa. Kaksiulotteisen röntgenkuvan kirkkausarvot vastaavat näytteen läpäisyä, joka riippuu näytteen kolmiulotteisesta vaimennuskerroinjakaumasta. Vaimennuskerroin μ riippuu röntgensäteilyn energiasta, materiaalista ja on suoraan verrannollinen tiheyteen. Yhdisteiden ja seoksien vaimennuskerroin on osiensa summa. Röntgenkuvaus soveltuu rajoitetusti materiaalin sisärakenteen tutkimiseen kolmiulotteisen tiedon puuttuessa.

Röntgentomografiassa näytteestä otetaan eri suunnista suuri määrä röntgenkuvia, joiden avulla voidaan rekonstruoida näytteen vaimen-

nuskerroinjakauma, eli saadaan näytteestä röntgentomografiakuva. Röntgentomografia mahdollistaa siten kolmiulotteisen sisärakenteen tutkimisen näytettä hajottamatta. Röntgenkuvaus ja -tomografia ovat olleet pitkään tärkeitä kuvantamismenetelmiä lääketieteessä, mutta niitä käytetään yhä enemmän myös teollisuudessa ja tutkimuksessa. Materiaalitutkimuksessa käytetään tyypillisesti röntgenmikrotomografialaitteita, joiden paikkaresoluutio (1–100 μm) mahdollistaa monien heterogeenisten materiaalien sisärakenteen tutkimisen.

Röntgentomografiakuvat ovat yleensä geometrisesti tarkkoja, mutta kuviin perustuva kvantitatiivinen tiheysmittaus on haastavaa erilaisen kuvavirheiden takia. Kuvavirheitä aiheuttavat esimerkiksi röntgenlähteen ja -kameran epäideaalisuudet ja epästabiilisuudet sekä röntgensäteilyn sironta. Yksi merkittävimmistä kuvavirheistä on niin sanottu säteilyn koveneminen, joka syntyy röntgenputken tuottaman monienergisien säteilyn seurauksena. Rekonstruktio-matematiikka olettaa säteilyn olevan yksienergistä, mikä johtaa vääristyneeseen vaimennuskerroinjakaumaan. Tämän kuvavirheen korjaamiseen on olemassa standardimenetelmä, jonka tarkkuus riittää tavanomaiseen kuvantamiseen.

Menetelmä

Menetelmässä näytteen kastumisprosessia seurataan ottamalla siitä sopivin väliajoin röntgentomografiakuvia. Veden imeytyminen kasvattaa näytteen vaimennuskeroainta, joten yksinkertaisimmillaan kas-tuneen ja kuivan tilan välinen erotuskuva voidaan kalibroida vastaamaan vesipitoisuusjakaumaa. Monet materiaalit kuitenkin muuttavat muotoaan veden vaikutuksesta, jolloin myös kiintoaineen tiheydenmuutokset vaikuttavat näytteen vaimennuskerroinjakaumaan, eikä yllä esitetty analyysi toimi sellaisenaan. Väitöstyössä tämä ongelma

ratkaistiin mittaamalla näytteen muodonmuutos ja huomioimalla se analyysissä.

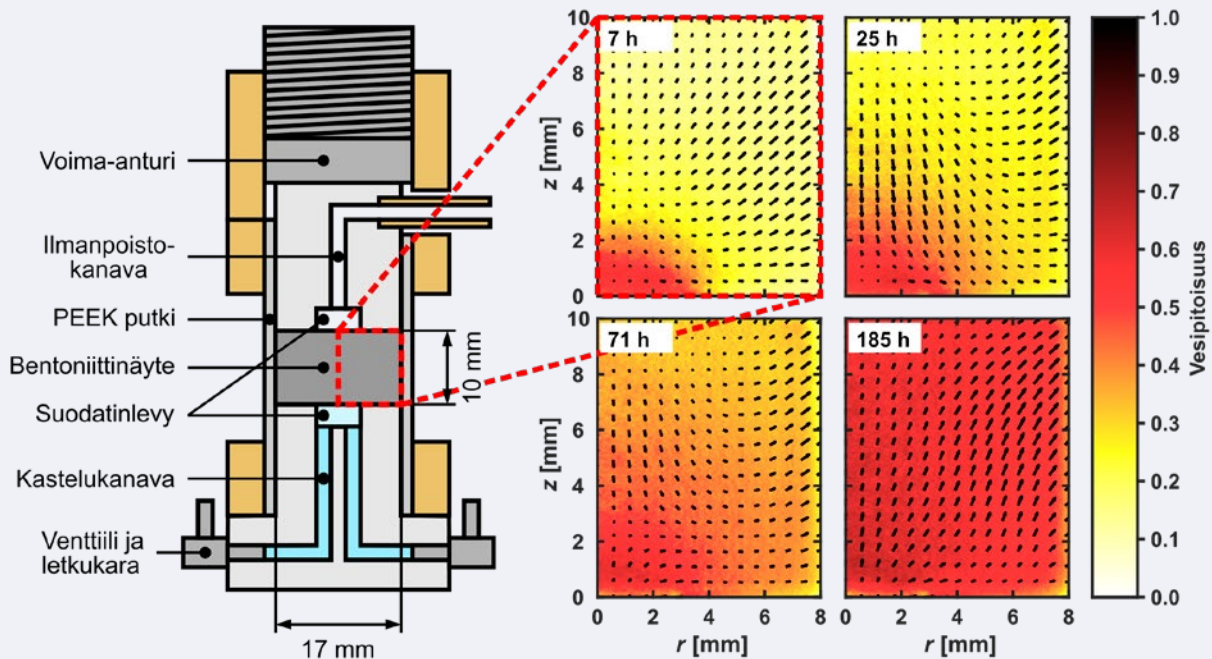
Menetelmässä näytteen oletetaan koostuvan kiintoaineesta ja vedestä (ilma voidaan unohtaa pienen tiheyden vuoksi), jolloin näytteen vaimennuskerroin on

$$\mu = c_s \cdot \rho_s + c_w \cdot \rho_w \tag{1}$$

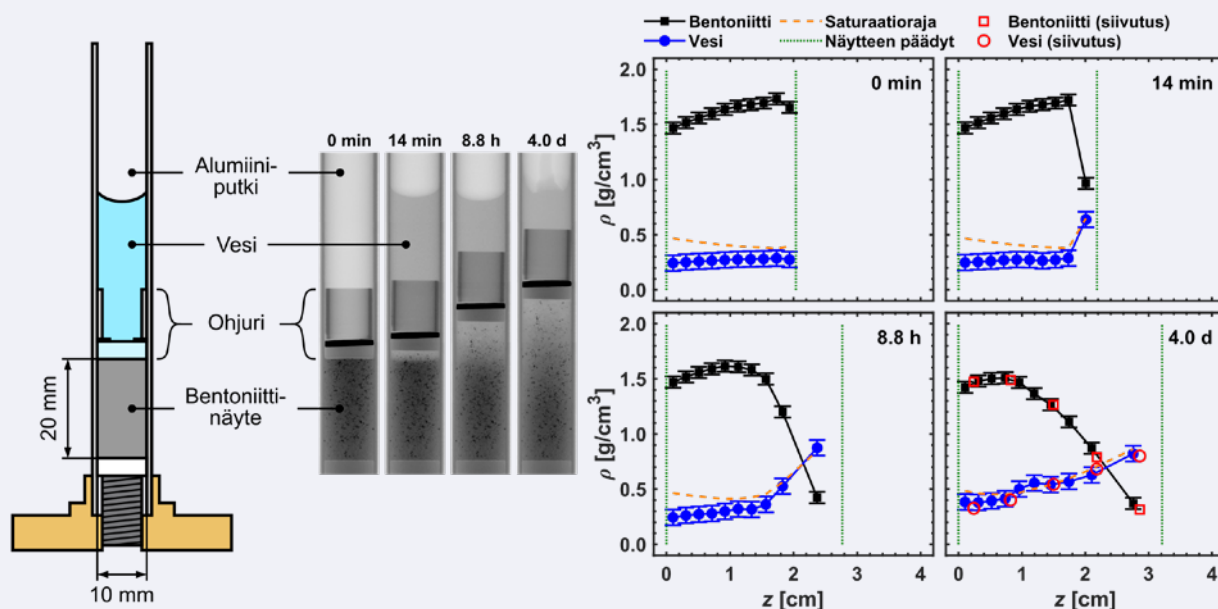
missä ρ_s ja ρ_w ovat kiintoaineen ja veden osatiheydet. Kiintoaineen ja veden massavaimennuskertoimet c_s ja c_w voidaan useimmiten määrittää näytteen eri tilojen kuvista tai vaihtoehtoisesti kuvaamalla erillisiä kalibroitinnäytteitä. Näytteestä otettujen kuvien joukosta valitaan yksi referenssitilaksi, jossa vesipitoisuusjakauma $w = \rho_w / \rho_s$ tunnetaan. Tyypillinen valinta on alkutila, jossa näyte on yleensä täysin kuiva tai kosteuden tiedetään jakautuvan tasaisesti. Tämä tieto mahdollistaa kiintoaineen referenssitilan osatiheysjakauman $\rho_{s,ref}$ määrittämisen referenssitilan kuvasta yhtälön 1 avulla.

Sopivaa kuvakorrelaatiotekniikkaa käyttämällä voidaan mitata referenssitilan ja deformatiivisen tilan välinen siirtymävektorikenttä u , jonka avulla saadaan kiintoaineen osatiheysjakaumaksi deformatiivisessa tilassa $\rho_s = \rho_{s,ref} / (1 + \nabla \cdot u)$. Lopulta deformatiivisen tilan kuvasta voidaan laskea veden osatiheysjakauma käyttäen yhtälöä 1. Menetelmä tuottaa siten kolmiulotteiset kiintoaineen ja veden osatiheysjakaumat sekä siirtymävektorikentät ajan funktiona.

Näytteen muodonmuutos on mitattava tarkasti, sillä menetelmä on herkkä siirtymien virheille. Tätä varten näytteen tulee sisältää kattavasti yksityiskohtia ja paikkaresoluution tulee olla riittävä yksityiskohtien ja niiden liikkeen erottamiseen. Aikaresoluution kannalta kuvausaika tulee pitää riittävän lyhyenä ja kuvia tulee ottaa sopivan usein suhteessa kastumisprosessin nopeuteen. Koska tavanomainen röntgenmikrotomografia voi joissakin tapauksissa olla liian hidas (kuvausaika



Kuva 1. Bentonitiin vakiotilavuuskokeen näytekammio ja esimerkit tuloksista neljänä eri ajanhetkenä. Tulokuvien vesipitoisuusjakaumat ja siirtymävektorikentät on keskiarvoistettu sylinterisymmetrisesti ja siirtymät on skaalattu tekijällä 5.



Kuva 2. Bentoniitin yksiuotteisen paisumiskokeen näyteputki sekä esimerkit röntgenkuvista ja tuloksista neljänä eri ajanhetkenä. Näytteen yläpuolella olevan vettä läpäisevän ohjurin tarkoituksena oli helpottaa näytteen yläpinnan seuraamista kokeen aikana. Tulostuksessa on putkensuuntaisten osatiheysprofiilien lisäksi saturaatorajat (kiintoaineen osatiheydestä riippuva suurin mahdollinen veden osatiheys) ja viimeisessä tulostuksessa on näytteen siivutuksesta saatu validointidata.

10 min – 10 h), voidaan menetelmässä käyttää myös pelkkää röntgenkuvausta. Tämä mahdollistaa huomattavasti nopeampien prosessien seurannan, sillä yksittäinen röntgenkuva saadaan otettua sekunneissa. Röntgenkuvausta voidaan tosin hyödyntää vain yksi- tai kaksiuotteisissa näyte- ja kastelugeometrioidissa.

Väitöstyössä kehitettiin myös standardia korjausmenetelmää kehittyneempi versio säteilyn kovenemisesta aiheutuvaan kuvavirheeseen, joka korjaa samalla lähteen ja kameran epästabiilisuuksista ja -ideaalisuuksista johtuvia virheitä ja siten lisää kuvien vertailukelpoisuutta ja menetelmän tarkkuutta. Kehitetty korjausmenetelmä perustuu kuvausten yhteydessä otettuihin röntgenkuviin eripaksuisista referenssilevyistä. Referenssilevyn materiaalin (efektiivisen) järjestyksellään ollessa lähellä näytemateriaalin vastaavaa voidaan otettujen referenssikuvien avulla kuvasignaali korjata pikselieittäin vastaamaan yksienergistä säteilyä, jolloin rekonstruktio tuottaa lähes vääristymättömän vaimennuskerroinjakauman.

Sovelluskohteet

Menetelmää sovellettiin ensimmäisenä veden kulkeutumisen ja muodonmuutosten mittaamiseen vakioilavuudessa pidettyihin bentoniittinäytteisiin [1]. Tämän koetyypin tarkoituksena oli tuottaa mallintamiseen tarvittavaa tietoa hyvin määritellyissä näyte- ja kastelugeometrioidissa. Sylinterinmuotoisia näytteitä kasteltiin vedellä suodatinlevyn kautta alapäädystä. Kokeissa muuteltiin bentoniitin alkutiheyttä ja suodatinlevyn halkaisijaa. Kukin näyte kammioineen kuvattiin röntgentomografialla (kuvausaika 45 min) noin 10 kertaa 1–2 viikkoa kestävä kokeen aikana. Kuvassa 1 on esitetty kokeissa käytetyn

näytekammion rakenne ja esimerkkejä tuloksista. Tulostusarjasta nähdään veden diffuusiomainen eteneminen (ei selkeää vesirintamaa) ja siirtymävektorikentän monimutkainen aikakehitys. Kokeen aikana seurattiin myös bentoniittinäytteen tuottamaa paisuntapainetta voima-anturien avulla.

Toisena pääsovelluksena oli bentoniitin yksiuotteisen paisumisen seuraaminen [2]. Tämän koetyypin tarkoituksena oli jäljitellä bentoniitin eroosiota (erityisesti sen alkuvaihetta) pohjaveden täyttämään kalliorakoon. Kokeessa vettä laitettiin putkessa olevan bentoniittinäytteen päälle, minkä jälkeen nopeaa paisumisprosessia seurattiin röntgenkuvaamalla näytettä 20 s – 20 min välein neljän päivän ajan. Näissä kokeissa muuteltiin bentoniitin alkutiheyttä ja -kosteuspitoisuutta.

Kuvassa 2 on esitetty kokeissa käytetyn näyteputken rakenne sekä esimerkit röntgenkuvista ja tuloksista. Tuloksista nähdään, että näytteen yläpää kastuu ja paisuu alussa hyvin nopeasti, minkä jälkeen vesi ja siihen liittyvä muodonmuutos etenevät hidastuen näytteen alapäätä kohti. Kokeen jälkeen näyte siivutettiin ja siivujen osatiheydet mitattiin punnitsemalla ne ennen ja jälkeen uunikuivatuksen. Viimeisestä tulostuksesta nähdään, että siivutuksen ja menetelmän antamat tulokset ovat hyvin yhtenevät.

Vaikka menetelmän tärkeimpänä sovelluskohteena oli bentoniitti, sitä sovellettiin väitöstyössä myös biokomposiittimateriaaliin, jossa matriisimateriaalina oli biopohjainen muovi ja vahvikkeena puukuitua [3]. Biokomposiitti on ympäristöystävällinen vaihtoehto tavalliselle komposiittimateriaalille, mutta huonona puolena on luonnonkuitujen herkkyys kosteudelle. Menetelmän avulla saatiin mitattua arvokasta aikasarjatietoa veden kulkeutumisesta, jota voidaan hyödyntää biokomposiittimateriaalien kehittämisessä.

Johtopäätökset

Väitöstyössä kehitetty röntgenkuvantamiseen perustuva menetelmä veden kulkeutumisen ja muodonmuutoksen mittaamiseksi mahdollistaa ainutlaatuisen yksityiskohtaisen tiedon hankkimisen paisuvien materiaalien mallintamista varten. Menetelmän toimivuuden tärkeimpiä edellytyksiä ovat riittävä paikka- ja aikaresoluutio, useiden kuvavirheiden huolellinen korjaaminen ja näytteen muodonmuutoksen tarkka mittaaminen.

Menetelmää sovellettiin onnistuneesti ydinjätteen loppusijoituk-

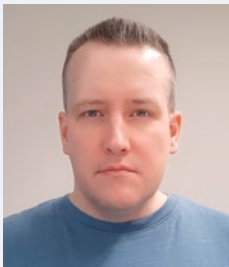
sessä käytettävään bentoniittisaveen, mutta myös biokomposiittimateriaaliin. Menetelmän avulla tuotettua tietoa voidaan hyödyntää ennistä parempien kulkeutumis- ja materiaalimallien kehittämiseen ja validointiin. Luotettavaa mallinnusta tarvitaan loppusijoituskonseptin kokonaisturvallisuuden arvioinnissa ja kestävämpien biokomposiittimateriaalien kehittämisessä.

Väitöskirja on hyväksytty Jyväskylän yliopistossa 13.9.2023 ja on saatavilla osoitteesta: <http://urn.fi/URN:ISBN:978-951-39-9718-2>

Viitteet

- [1] Harjupatana, T., Alaraudanjoki, J., & Kataja, M. (2015). X-ray tomographic method for measuring three-dimensional deformation and water content distribution in swelling clays. *Applied Clay Science*, 114(September), 386-394. DOI: 10.1016/j.clay.2015.06.016
- [2] Harjupatana, T., Miettinen, A., & Kataja, M. (2022). A method for measuring wetting and swelling of bentonite using X-ray imaging. *Applied Clay Science*, 221, Article 106485. DOI: 10.1016/j.clay.2022.106485
- [3] Miettinen, A., Harjupatana, T., Kataja, M., Fortino, S., & Immonen, K. (2016). Time-resolved X-ray microtomographic measurement of water transport in wood-fibre reinforced composite material. In B. Madsen, A. Biel, Y. Kusano, H. Lilholt, L. Mikkelsen, L. Mishnaevsky, & B. Sørensen (Eds.), *37th Risø International Symposium on Materials Science (Article 012037)*. Institute of Physics Publishing Ltd.. IOP Conference Series : Materials Science and Engineering, 139. DOI: 10.1088/1757-899X/139/1/012037

Kirjoittaja



FT Tero Harjupatana
Tutkijatohtori
Jyväskylän yliopisto
tero.t.harjupatana@juu.fi