

Aan

Ministerie van Infrastructuur en Waterstaat
Directoraat-Generaal Water en Bodem
Bestuurskern WOM/BOW
T.a.v. Dhr P. Snoep

Van

Dr. ir. J.J. Dijkstra
Dr. A.L. Hoving
Prof. Dr. R. N. J. Comans

Onderwerp

Beoordeling milieuhygiënische kwaliteit van bentoniet voor de afdichting van boorgaten

Samenvatting

Bentoniet is een natuurlijke zwelklei die wordt gebruikt om boorgaten af te dichten. Sommige bentonietproducten bevatten van nature verhoogde gehalten van metalen. De vraag die voorligt is of er terecht mag worden aangenomen dat er geen risico's zijn voor de grondwaterkwaliteit wanneer bentoniet wordt gebruikt met gehalten van chroom (Cr) en molybdeen (Mo) tot het niveau van de kwaliteitseis voor klasse "Wonen". Op basis van de huidige inzichten en de beschikbaarheid van informatie, concluderen we dat de hypothese gerechtvaardigd is dat bentoniet met gehalten van Cr en Mo tot klasse Wonen geen bedreiging vormt voor de grondwaterkwaliteit bij toepassing conform BRL 5079. Hierbij wordt aangetekend dat in de beschikbare literatuur de gehalten van Mo in bentoniet beperkt blijven tot enkele malen de achtergrondwaarde, en dat er geen bentonieten zijn gevonden met gehalten van Mo die reiken tot de kwaliteitseis voor klasse Wonen. Meer meetgegevens van het uitlooggedrag van bentoniet zijn wenselijk voor een nauwkeuriger beoordeling.

Aanleiding

Het Ministerie van Infrastructuur en Waterstaat (IenW) vraagt inhoudelijk advies inzake de milieuhygiënische kwaliteit van bepaalde typen bentoniet die gebruikt worden om boorgaten af te dichten. Bentoniet is een verzamelnaam voor een in de natuur voorkomende soort klei, die door de specifieke mineralogie het vermogen heeft om sterk te zwellen wanneer deze in contact wordt gebracht met water. De doorlatendheid voor water is daardoor zeer laag. Deze eigenschap maakt bentoniet geschikt als afdichtingsmateriaal voor boorgaten in de bodem, bijvoorbeeld in relatie tot de aanleg van bodemenergiesystemen of grondwaterwinputten.

Bentoniet wordt binnen het Besluit bodemkwaliteit als "grond" beschouwd omdat het een materiaal is dat van nature in de bodem wordt aangetroffen¹. De milieuhygiënische eisen die gesteld worden aan het gebruik van bentoniet als afdichtingsmateriaal zijn samengevat in de beoordelingsrichtlijn BRL 5079

¹ Bodemplus: <https://www.bodemplus.nl/onderwerpen/wet-regelgeving/bbk/vragen/grond-bagger-alg/faq/definitie-grond/>

Energy & Materials Transition

Princetonlaan 6
3584 CB Utrecht
Postbus 80015
3508 TA Utrecht

www.tno.nl

T +31 88 866 42 56

Datum

7 april 2023

Onze referentie

M10632

E-mail

joris.dijkstra@tno.nl

Datum

7 april 2023

Onze referentie

M10632

Blad

2/16

“Zwelkleipproducten voor toepassing als afdichtingsmateriaal in de bodem” (KIWA, 2021). Deze eisen betreffen de gehalten van metalen, PAK, PCB en minerale olie (Bijlage B Regeling Bodemkwaliteit, Rbk). Afhankelijk van de plaats waar de bentoniet wordt toegepast, dient de samenstelling van bentoniet te voldoen aan de kwaliteitseisen voor bodemkwaliteitsklasse “Landbouw/natuur” (achtergrondwaarde; overal toepasbaar) of de kwaliteitseisen voor de klassen “Wonen” of “Industrie” (beperkt toepasbaar, alleen in zones met een gelijke of mindere bodemkwaliteitsklasse).

Voor de definitie van “grond” in het Besluit bodemkwaliteit speelt de herkomst van het materiaal geen rol¹. De bentoniet die gebruikt wordt in Nederland is afkomstig uit het buitenland. Recentelijk is echter gebleken dat sommige bentonietproducten van nature metalen bevatten waarvan de gehalten niet voldoen aan de kwaliteitseisen die gelden voor de klasse “Landbouw/natuur” (achtergrondwaarde). Dit kan leiden tot een aanzienlijke inperking van het gebruik van de betreffende producten.

Vraagstelling

De beleidsmatige vraag die voorligt is of er terecht mag worden aangenomen dat er geen risico's zijn voor de grondwaterkwaliteit wanneer voor de afdichting van boorgaten bentoniet wordt gebruikt waarvan de gehalten van metalen de achtergrondwaarde (AW) overschrijden. Het gaat hierbij vooral om bentoniet met gehalten voor chroom (Cr) en molybdeen (Mo) tot het niveau van de kwaliteitseis voor klasse “Wonen”. Een complicerende factor die een experimentele beoordeling van dergelijke vraagstukken in de weg staat, is dat uitloogproeven die in Nederland in regelgeving zijn verwerkt (zoals de kolomproef NEN7373) door de ondoorlatende eigenschappen van bentoniet niet uitvoerbaar zijn zonder wezenlijke aanpassing van de proefopzet.

In deze notitie zal inhoudelijk worden beoordeeld of de hypothese gerechtvaardigd is dat de grondwaterkwaliteit niet wordt bedreigd wanneer voor het afdichten van boorgaten bentoniet wordt gebruikt met gehalten van metalen, specifiek Cr en Mo, die de AW overschrijden tot maximaal de gehalten behorende bij klasse “Wonen”.

De scope van dit onderzoek betreft de bentoniet die wordt toegepast als afdichtingsmateriaal zoals gedefinieerd in BRL 5079. Buiten de scope van dit onderzoek valt de bentoniet die wordt toegepast in zand-bentonietpolymeergel mengsels (BRL 1153) en hydraulisch gebonden groutproducten waarbij bentoniet deel uitmaakt van het product (BRL 5078). Deze laatste categorie producten, waaraan een hydraulisch bindmiddel is toegevoegd zoals cement, wordt beoordeeld als bouwstof.

In de volgende paragrafen zal de vraagstelling stapsgewijs worden beantwoord.

Samenstelling van bentoniet

Gehalten van Cr en Mo in bentoniet. IenW heeft aan TNO gegevens verstrekt van CEBO Holland B.V. over de samenstelling en herkomst van bentoniet die op de Nederlandse markt wordt gebruikt voor civieltechnische toepassingen in de

ondergrond. Daarnaast heeft KIWA sectorbrede ervaringen gedeeld over de samenstelling van bentoniet in relatie tot overschrijdingen van de AW². In Tabel 1 zijn de aangeleverde gegevens weergegeven met statistische kengetallen.

Op basis van de aangeleverde data (Tabel 1) kan worden vastgesteld dat Mo in de meeste gevallen de AW van 1.5 mg/kg overschrijdt, meestal binnen een factor twee, maximaal tot een factor 5. Uit de specifieke dataset kan geen overschrijding voor Cr worden vastgesteld. KIWA meldt dat een buitenlandse kleikorrelproducent in 50% van de gevallen een Cr-overschrijding van de AW aantreft², maar TNO heeft geen beschikking gehad over de specifieke dataset waarmee dit met statistische kengetallen kon worden getoetst.

Tabel 1. Aangeleverde samenstellingsgegevens (in mg/kg) van bentoniet naar herkomst ten aanzien van Mo en Cr, en vergelijking met de kwaliteitseisen voor de klasse Landbouw/natuur (AW) en klasse Wonen. Vetgedrukt zijn waarden > AW. De statistische kengetallen voor Griekse bentoniet zijn door TNO afgeleid van de aangeleverde dataset. Voor Cr zijn de waarden tussen haakjes de volgens de Rbk-bodemtypecorrectie gestandaardiseerde waarden op basis van het gemiddelde lutumgehalte zoals gemeten in de monsters; voor Mo is in de Rbk geen bodemtypecorrectie van toepassing.

Herkomst	Stof	Gem.	St.dev	Min.	Max.	AW	Wonen
Griekenland 1	Mo	2.9	0.8	1.5	5.7	1.5	88
Griekenland 2	Mo	3.0	0.8	1.5	5.0	1.5	88
Turkije	Mo	2.4	1.8	1.5	7.2	1.5	88
Wyoming 1,2	Mo	4.0	2.0	2.0	7.4	1.5	88
Griekenland 1	Cr	12.1 (6.9)	3.0 (1.7)	10 (5.7)	23 (13.1)	55	62
Griekenland 2	Cr	10.8 (5.7)	1.7 (0.9)	10 (5.3)	18 (9.5)	55	62

Tabel 2 bevat een overzicht van de range van gehalten van Cr en Mo in ruwe bentonieten (eenheid: mg/kg) van enkele bekende winplaatsen, zoals gerapporteerd in de internationale openbare vakliteratuur; dit betreft veelal studies waarbij bentoniet als afdichtingsmateriaal voor opslag van radioactief afval is onderzocht. Ondanks dat het overzicht in Tabel 2 niet uitputtend is, kan worden geconcludeerd dat de gehalten van Cr in de bentonieten afkomstig uit India en Griekenland gemakkelijk de AW van Cr (55 mg/kg) of de kwaliteitseis van klasse Wonen (62 mg/kg) kunnen overschrijden, ook indien rekening gehouden zou worden met bodemtypecorrectie (zie onder). Voor Mo zijn niet veel gegevens gevonden, maar de gevonden gehalten liggen rondom of boven de AW (1.5 mg/kg).

² E-mail KIWA (Robert Haarsma) dd. 24-3-2022.

Datum

7 april 2023

Onze referentie

M10632

Blad

4/16

Tabel 2. Samenstellingsgegevens (min – max; mg/kg) van Cr en Mo in bentoniet van verschillende herkomst zoals gerapporteerd in internationale vakliteratuur (Arslan et al., 2010; Curti en Wersin, 2002; Kadir et al., 2021; Karnland, 2010; Karnland et al., 2011, 2006; Olsson en Karnland, 2009; Svensson et al., 2011). n.g. = niet gemeten. Waarden zijn niet verrekend met bodemtypecorrectie. In de betreffende studies zijn zowel waarden voor het bulkmateriaal gegeven als voor de kleifractie (< 2 µm, of < 1 µm).

Herkomst	Bulk materiaal		Kleifractie <1 µm (*<2 µm)	
	Cr	Mo	Cr	Mo
Griekenland (Milos)	<14 – 89	n.g.	<14 – 62	n.g.
India (Ashapura)	89 – 260	<0.1	89 – 109	n.g.
VS (Wyoming, MX-80)	5 – 30	2.3 – 5	<7*	1.3 – 1.7*
Turkije (Resadiye)	<15.2	0.8	n.g.	n.g.
Turkije (Giresun)	7 – 34	n.g.	<7–21*	n.g.

Zowel Cr als Mo komen van nature in goed meetbare gehalten voor in de Nederlandse bodem (Mol et al., 2012). Ter illustratie daarvan geeft Tabel 3 een overzicht van de gehalten van Cr en Mo zoals die in Nederlandse mariene en fluviale kleigronden voorkomen. Deze gronden bevatten ten opzichte van zand- en veengrond van nature relatief hoge gehalten Cr die ogenschijnlijk boven de AW liggen maar hier zonder bodemtypecorrectie zijn weergegeven (Tabel 3). Van de gehalten van Cr in Tabel 3 mag worden aangenomen dat zij van natuurlijke oorsprong zijn. Gehalten van Mo kunnen in de toplaag van veengrond nog iets hoger uitvallen (mediaan 0.6-1.1 mg/kg) dan in kleigronden, echter voor Mo is een bijdrage van antropogene oorsprong niet uitgesloten (Mol et al., 2012).

Tabel 3. Gehalten van Cr en Mo (mg/kg) zoals die worden gevonden in Nederlandse mariene en fluviale kleigronden (bron: Geochemische Bodematlas van Nederland (Mol et al., 2012)). Top = toplaag (0-20 cm); onder = diepere bodemlaag (100-120 cm). Gegeven zijn mediaan, 95-percentiel (p95) en hoogste waarneming (max). Waarden zijn niet gestandaardiseerd.

		Cr (mg/kg)			Mo (mg/kg)		
		mediaan	p95	max	mediaan	p95	max
Mar. klei	top	72	96	123	0.60	1.4	2.6
Fluv. klei	top	75	116	128	0.60	1.4	2.0
Mar. klei	onder	68	101	112	0.54	2.2	11.2
Fluv. klei	onder	74	122	126	0.45	1.9	2.6

Voor wat betreft Cr zijn de gehalten in de buitenlandse bentonieten (Tabel 1 en 2) iets lager (Griekse, VS, Turkse bentoniet) of vergelijkbaar (sommige Griekse, Indiase in Tabel 2) met de gehalten die in Nederlandse bodems van nature worden aangetroffen (Tabel 3); de gehalten in Indiase bentoniet (Tabel 2) zijn echter duidelijk hoger. De gehalten van Mo zijn in Griekse, Turkse en Amerikaanse bentoniet gemiddeld duidelijk hoger (Tabel 1 en 2) dan in Nederlandse bodems (Tabel 3).

Datum

7 april 2023

Onze referentie

M10632

Blad

5/16

Bodemtypecorrectie. De BRL 5079 (Nationale beoordelingsrichtlijn Zwelkleiproducten, versie 21-6-2021) schrijft voor dat zwelklei dient te worden getoetst op alle 14 in Bijlage B van de Rbk genoemde metalen, na bodemtypecorrectie (Bijlage G Rbk). Tijdens dit onderzoek is gebleken dat de bodemtypecorrectie uit de Rbk potentieel van grote invloed is bij de toetsing van bentoniet aan AW vanwege het hoge lutumgehalte (zie het grote verschil tussen gemeten en gestandaardiseerde waarden voor Cr in Tabel 1). Bij lutumgehalten hoger dan die van de standaardbodem (25%) worden de gemeten gehalten van veel metalen, afhankelijk van de stofafhankelijke constanten, naar beneden toe gecorrigeerd. Bij samenstellingswaarden die binnen ongeveer een factor twee hoger liggen dan de AW kan dit dus het verschil betekenen tussen voldoen of niet voldoen aan de norm. Zoals opgemerkt door KIWA² worden er met de voorgeschreven bepalingmethode (pipetmethode, NEN 5753) regelmatig lutumgehalten gerapporteerd die lager zijn dan verwacht mag worden, en dus mogelijk tot hogere gestandaardiseerde gehalten leiden. Het hogere gehalte (~85%) aan zwelkleimineralen (montmorilloniet) gevonden met röntgendiffractie in de dataset van CEBO voor enkele bentonieten van Griekse oorsprong, versus lagere gemeten lutumgehalten (~65-70%) in dezelfde monsters, kan daarvoor een onafhankelijke aanwijzing vormen. In de internationale literatuur wordt met kwantitatieve röntgendiffractie (zgn. Rietveld- XRD) een vrij brede range van gehalten montmorilloniet gemeten, nl. 70-92% voor bentonieten van verschillende oorsprong (Fernandez et al., 2022), 80-84 % voor Amerikaanse (Wyoming) bentoniet (Karnland, 2010), 58-70% voor Griekse (Milos) en 78-80% voor Indiase (Kutch) bentoniet (Olsson en Karnland, 2009). Met röntgendiffractie wordt echter het gehalte *kleimineralen* bepaald (d.w.z. klei in de mineralogische betekenis), met de pipetmethode het gehalte deeltjes < 2 µm (d.w.z. klei in de fysische betekenis, in het Nederlands als lutum aangeduid). Resultaten van beide methoden zijn daarom niet eenduidig vergelijkbaar. Bovendien moet worden gewezen op het feit dat de bodemtypecorrectie in de Rbk, inclusief de bepalingmethode, is vastgesteld om te corrigeren voor variaties in de natuurlijke, Nederlandse achtergrondconcentraties; over de toepasbaarheid daarvan bestaat wetenschappelijke discussie (Spijker, van Vlaardingen en Mol, 2008). Of deze correctie op inhoudelijke gronden van toepassing is op buitenlandse bentonieten is mede daarom niet eenduidig te beantwoorden (zie aanbevelingen).

Vorm waarin metalen aanwezig zijn in bentoniet

Hoewel de emissiewaarden uit Bijlage A (Bouwstoffen) en de maximale (samenstellings-)waarden uit Bijlage B (Grond en Baggerspecie) voor de meeste stoffen geen onderscheid maken in de chemische vorm, is deze eigenschap zeer bepalend voor zowel de mogelijkheid tot uitloging als de toxiciteit.

Wijze waarop Cr en Mo gebonden zijn in ruwe bentoniet. Metalen zoals Cr en Mo die in spoorhoeveelheden (< 100 mg/kg of 0.01% m/m; (Sposito, 2008) aanwezig zijn in kleimineralen kunnen deel uitmaken van het kristalrooster (substitutie van de elementen waaruit de kleimineralen zijn opgebouwd) en zijn dan zo goed als niet uitloogbaar. Metalen kunnen ook gebonden zijn tussen of aan kleimineralen, in dat geval zijn ze (deels) uitwisselbaar met de oplossing en in dat geval beschikbaar voor uitloging. Tenslotte is het ook mogelijk dat Cr en Mo zich geheel

of gedeeltelijk in de doorgaans 10-20% onzuiverheden van de ruwe bentoniet bevinden, in de vorm van niet-kleimineralen en andere bestanddelen, zoals pyriet, calciet, goethiet, organische stof die voorkomen in ruwe bentoniet (Arslan et al., 2010; Kadir et al., 2021; Karnland, 2010; Karnland et al., 2011, 2006). Sommige daarvan zijn oplosbaar waardoor metalen vrij zouden kunnen komen (bijvoorbeeld pyriet of calciet), sommige andere (goethiet) zijn dat niet. Uit Tabel 3 blijkt dat zowel Cr en Mo niet exclusief in de kleifraction voorkomen ($< 2 \mu\text{m}$), in veel gevallen is de meerderheid in de bulk aanwezig, d.w.z. in de onzuiverheden van de bentoniet. De gegevens zijn echter te gefragmenteerd om conclusies te trekken over de vorm waarin Cr en Mo gebonden zijn in de kleimineralen en de consequenties daarvan voor de uitloogbaarheid.

Chemische vorm van Cr en Mo in bentoniet. Voor Cr geldt dat dit onder natuurlijke omstandigheden hoofdzakelijk in de driewaardige (kationische) vorm voorkomt, Cr[III] (Brookins, 1988; Fendorf, 1995; Oze et al., 2007), hetgeen de niet-toxische vorm betreft die bekend staat als immobiel in de bodem (Fendorf, 1995; Palmer en Puls, 1994). Dit relatief immobiele gedrag van Cr[III] in de bodem wordt op basis van bekende sorptiereacties goed begrepen (Dijkstra et al., 2009). Daarentegen is de zeswaardige (oxyanionische) vorm Cr[VI] toxisch (European Chemicals Agency (ECHA), 2023). Deze vorm ontstaat vooral tijdens antropogene (industriële) processen bij hoge temperaturen, zoals bij cementproductie (bijv. Klemm, 1994). Ten opzichte van het immobiele Cr[III] is Cr[VI] mobiel en goed uitloogbaar (Estokova et al., 2018; van der Sloot, 2000) maar thermodynamisch alleen stabiel onder oxische omstandigheden en bij hoge pH (Brookins, 1988; Unceta et al., 2010). Cr[VI] kan echter onder sommige natuurlijke omstandigheden stabiel zijn of zelfs worden gevormd (Oze et al., 2007), maar meestal wordt aanwezig Cr[VI] in de bodem omgezet naar Cr[III] na contact met natuurlijke reducerende bestanddelen zoals organische stof of zwavelverbindingen (bijv. Palmer en Puls, 1994). Hoewel geen specifieke informatie over de chemische vorm van Cr in bentonieten is gevonden, is het aannemelijk dat Cr[III] kan substitueren voor het aluminium kation (Al[III]) in de octaëderlaag van montmorilloniet (bijv. Khoury en Al-Zoubi, 2014) hetgeen zowel onderbouwend voor de aanname dat Cr zich voor het grootste deel in de ongevaarlijke Cr[III] vorm zal bevinden, als dat het niet uitloogbaar is (zie onder).

Molybdeen staat niet bekend als zeer toxisch (zie Smedley en Kinniburgh, 2017 voor detail). Van molybdeen wordt aangenomen dat onder de meeste oxische en sub-oxische omstandigheden de Mo[VI]-vorm dominant is, specifiek het molybdaat-anion (MoO_4^{2-}) (Brookins, 1988; Smedley en Kinniburgh, 2002). Ten opzichte van Cr is er over de chemische vorm van Mo in zijn algemeenheid minder bekend, maar er kan met enige voorzichtigheid worden aangenomen dat Mo in bentoniet in de vorm van [Mo[VI]] zal zijn. Mo[VI] is in een tamelijk breed pH-traject tamelijk mobiel in de bodem (Dijkstra et al., 2009; Smedley en Kinniburgh, 2017).

Te verwachten uitloogmechanismen van bentoniet in toepassingen

Bentoniet wordt in de Rbk beoordeeld als grond¹ en dus op basis van het totaalgehalte van stoffen. Totaalgehalten hebben voor de meeste stoffen echter

Datum

7 april 2023

Onze referentie

M10632

Blad

6/16

Datum

7 april 2023

Onze referentie

M10632

Blad

7/16

nauwelijks enige voorspellende waarde voor de mate van uitloging uit grond, bouw- en reststoffen (Dijkstra, 2007; Kosson et al., 2002; Nieuwenhuis en Lame, 2006) en dus voor het mogelijke risico op verspreiding. Daarentegen worden bouwstoffen primair beoordeeld op basis van uitloging, waarbij het dominante uitloogmechanisme (percolatie door korrels, of langzame afgifte door diffusie) bepalend is voor de wijze van beoordeling (als niet-vormgegeven of vormgegeven bouwstof). Op grond van de vraagstelling in deze notitie is het evident dat het uitloogmechanisme in belangrijke mate bepalend is voor de vraag of stoffen die in gehalten boven de AW in bentoniet aanwezig zijn een risico vormen voor de grondwaterkwaliteit.

De uitloging van zogenaamde *monolithische* (vormgegeven) bouwstoffen (zoals beton, baksteen) is vooral afhankelijk van het blootgestelde uitwendige oppervlak van de bouwstof. Processen zoals diffusie en oppervlakte-afspoeling spelen de belangrijkste rol bij de uitloging van stoffen uit dergelijke materialen naar het omringende (grond)water. De consequentie van diffusiecontrole is dat de eventuele uitloging van stoffen alleen via het blootgestelde oppervlak plaatsvindt en daardoor gelimiteerd wordt door diffusie vanuit de binnenkant van het product. De uitgeloopte concentraties zijn daardoor relatief laag ten opzichte van de voor uitloging beschikbare concentratie van een stof. Deze bouwstoffen worden getest met de diffusieproef (NEN7375), die op deze principes is gebaseerd. Voor *korrelvormige* (niet-vormgegeven) materialen is het in- en uitwendige contactoppervlak tussen bouwstof en water zo groot, dat de uitloging en verspreiding vooral gecontroleerd wordt door de chemische factoren die de oplosbaarheid van stoffen bepalen, en door de hoeveelheid water die door de poriën en langs de korrels van het materiaal stroomt. Voor korrelvormige materialen is de uitloging van stoffen over het algemeen veel sneller en de vracht veel groter dan in het geval van vormgegeven bouwstoffen. Voor deze bouwstoffen is de kolomproef (NEN7373) bedoeld, die op dit principe van mobilisatie en percolatie is gebaseerd.

Bentoniet is weliswaar fysisch gezien een korrelvormig product, echter wanneer toegepast in de ondergrond en geheel gezwollen heeft het materiaal een dermate lage doorlatendheid dat van doorstroming van de interne poriën, op een aantal situaties na (zie onder), niet of nauwelijks sprake is. Deze situatie komt overeen met die van vormgegeven (monolithische) bouwstoffen, die met een diffusieproef worden beproefd op uitloging. Echter, anders dan vormgegeven bouwstoffen zoals bijvoorbeeld beton, vertoont klei zwel- en krimpgedrag en gedraagt het zich in de toepassing plastisch. Deze eigenschappen maken dat bentonieten volgens de gangbare systematiek voor bouwstoffen niet eenduidig zijn in te delen in "vormgegeven" of "niet-vormgegeven". Dit bijzondere aspect van sommige materialen is aan de orde geweest bij het ontwikkelen van de Europese uitloogtest-systematiek in CEN/TC351, waarbij in het ondersteunende rapport is erkend dat "clayey or paste-like products" zich in hun toepassing diffusie-gecontroleerd gedragen (van der Sloot et al., 2008). Hier is een aangepaste diffusieproef uit voortgevloeid in de vorm van de Annex A in EN-16637-2 (CEN/TC351, 2014), naar model van NEN 7347:2006 (NEN, 2006). Hoewel deze

proef niet in de Rbk is voorgeschreven, is de proef vanwege bovengenoemde redenen relevant voor de huidige vraagstelling (zie aanbevelingen).

Datum

7 april 2023

Onze referentie

M10632

Blad

8/16

Uitloogmechanismen in relatie tot toepassingsbereik BRL 5079. Bentoniet wordt in het toepassingsbereik van BRL 5079 gebruikt voor het afdichten van boorgaten (milieuhygiënisch booronderzoek, bodemenergiesystemen, grondwaterwinputten, horizontaal gestuurde boringen), aanleggen van waterscheidende wanden (tunnelbouw) en voor boorspoelingen en afsluitende steunvloeistoffen waarbij de zwelklei grotendeels wordt teruggewonnen (KIWA, 2021).

Afdichten van boorgaten. Bentoniet kan worden gebruikt om een boorgat door een ondoorlatende laag in de ondergrond te herstellen, om zogenaamde kortsluitstroming tussen watervoerende pakketten te voorkomen. De werkwijze daarbij is voorgeschreven in SIKB protocol 11001 en 2101 (SIKB - Stichting Infrastructuur Kwaliteitsborging Bodembeheer, 2018, 2019). Afhankelijk van de situatie zijn twee methoden gangbaar: 1) alleen ter hoogte van de kleilagen wordt ondoorlatend materiaal (zoals bentoniet) aangebracht, daarbuiten wordt doorlatend aanvulmateriaal gebruikt; 2) ondoorlatend materiaal wordt aangebracht over de gehele diepte van de boring. Hoewel voor de laatste methode bentoniet kan worden gebruikt, lijken cementgebonden grouts in de praktijk meer gangbaar te zijn (Inspectie Leefomgeving en Transport (ILT), 2021). Wanneer bentoniet (of een zand-bentoniet mengsel) over de gehele diepte van het boorgat is aangebracht, mag verwacht worden dat de uitloging uit de bentoniet diffusiegecontroleerd zal zijn op die delen van het dieptetraject waar de bentoniet in contact staat met goed doorlatend materiaal (bijvoorbeeld een zandpakket). Een afdichting van een kleilaag met bentoniet kan echter in theorie een doorlatendheid hebben die (bij exact voldoen aan de in SIKB protocol 2101 vereiste doorlatendheid van 10^{-9} m/s) hoger is dan die van de omringende kleilaag. De mediane waarde van de doorlatendheid van kleilig zand/zandige klei op de schaal van steekmonsters (cm-schaal) ligt tussen $3.7 - 7.3 \times 10^{-10}$ m/s en die van begraven klei van 5.8×10^{-11} tot 7.3×10^{-10} m/s (Buma et al., 2021). Bij grote hydraulische gradiënten over een afdichtende kleilaag kan de bentoniet in theorie doorstroomd worden met grondwater, waardoor er een percolatie-regime ontstaat en een daardoor potentieel verhoogde uitloging. Berekende fluxen van doorstroomd water in een dergelijk scenario zijn echter relatief laag (De Boer et al., 2021)³ waardoor de uitloging in dit scenario naar verwachting beperkt is. De verwachting is bovendien dat dit in de praktijk niet een dominant scenario zal zijn. Hoewel de doorlatendheid van bentoniet van veel factoren afhankelijk is, kunnen waarden in de orde van 10^{-11} - 10^{-14} m/s worden gehaald voor gecompacteerd bentoniet (Karnland, 2010; Karnland et al., 2006; Svensson et al., 2011) maar of deze lage waarden voorkomen in de praktijk van afdichten van boorgaten is niet bekend.

Boorspoelingen. Bij gebruik van bentoniet in boorspoelingen is sprake van een suspensie. Suspensies van 3% tot 10% bentoniet hebben eigenschappen die

³ Berekende flux per doorboring 0.06 L/j; dikte kleilaag 20 m, doorsnede doorboring 0.15m, stijghoogteverschil 5 m. Zie De Boer et al. (2022) voor volledige berekeningscondities.

Datum

7 april 2023

Onze referentie

M10632

Blad

9/16

zorgen voor boorgat/sleuf stabiliteit, afvoer van (boor)gruis, smering en verlagen van waterdoorlaatbaarheid⁴. Bentoniet boorspoelingen hebben viskeuze, gelachtige (thixotropische) eigenschappen (Zhang et al., 2020). Boorspoelingen met bentoniet worden teruggewonnen (KIWA, 2021) en na gebruik afgevoerd en/of geregenereerd, maar een relatief kleine hoeveelheid zal achterblijven in de annulaire ruimte tussen het boorgat en de getrokken buis⁴. Wat de dominante uitloogmechanismen zullen zijn van de achtergebleven restanten is niet eenduidig vast te stellen. Uit resten van een bentonietsuspensie kan naar verwachting na enige tijd water uittreden dat zich vermengt met grondwater, waardoor de uitloging vooral voor mobiele stoffen sneller is dan op basis van diffusie verwacht mag worden. Wanneer de achterblijvende bentoniet een lagere doorlatendheid heeft dan de omgeving, mag verwacht worden dat de uitloging daaruit overwegend diffusiebepaald is.

Overige toepassingen. In alle overige toepassingen waarbij bentoniet een afdichtende c.q. waterkerende functie heeft, en een doorlatendheid heeft die lager is dan de omgeving, vormt de bentoniet een “stagnante zone” waarvoor kan worden aangenomen dat eventuele uitloging diffusie-gecontroleerd zal zijn.

Geochemische stabiliteit. Geochemische verwerking van kleimineralen, en daardoor verlies van functionaliteit, zal in de praktijk niet noemenswaardig plaatsvinden aangezien bentoniet (en hoofdbestanddeel montmorilloniet) in geochemisch opzicht al een stabiel verweringsproduct is. Deze veronderstelde stabiliteit en functionaliteit is de reden dat bentoniet een kandidaat- buffermateriaal is voor de eindberging van hoog-radioactief afval (Olsson en Karnland, 2011). De functionaliteit van veel soorten zwelklei kan worden aangetast door contact met zout (grond)water, waardoor de zwelcapaciteit afneemt en de doorlatendheid toeneemt (Dutta en Mishra, 2015; Lee et al., 2014). Ook bij het dimensioneren van bentoniethoudende afdichtingen houdt men rekening met functieverlies door het mogelijke effect van zout (NEN, 2010). Toename van de doorlatendheid door inwerking van zout grondwater kan dus in sommige gevallen zorgen voor meer doorstroming en daardoor een (potentieel) hogere uitloging. Ook kan zout zorgen voor uitwisseling van metalen die aan kleideeltjes gebonden zijn, en daardoor potentieel voor een verhoogde uitloging zorgen. Voor Mo is dat effect niet uit te sluiten, voor Cr is het onwaarschijnlijk dat dit de uitloging zal beïnvloeden omdat Cr naar verwachting immobiel is als gevolg van de chemische vorm.

Beschikbaarheid van uitlooggegevens van bentoniet

De omvangrijke uitloogdatabase van ECN/TNO in LeachXS⁵ is geraadpleegd om te inventariseren of er gegevens beschikbaar zijn van de uitloging van metalen uit bentoniet(producten) met gestandaardiseerde uitloogproeven. Dit bleek echter niet het geval te zijn⁶. De waarschijnlijke oorzaak hiervan is dat bentoniet in de Rbk niet als bouwstof wordt beoordeeld en dat er geen aanleiding is geweest om

⁴ E-mail Jeroen Stam, CEBO, dd. 12-1-2022.

⁵ <https://www.vanderbilt.edu/leaching/leach-xs-lite/>; <http://leachxs.vueinnovations.com/leachxs/>

⁶ Eigen inspectie LeachXS database en consultatie Dr. H.A. van der Sloot (ECN / Vandersloot consultancy).

bentoniet op uitloging te beproeven. In de internationale vakliteratuur zijn weinig metingen van ruwe bentonieten gevonden waarbij 1) de gehalten van Cr en/of Mo boven AW liggen en 2) waarvan de uitloging van deze metalen is gemeten:

Datum

7 april 2023

Onze referentie

M10632

Blad

10/16

- Fernandez et al. (2022) rapporteren concentraties van een range van metalen in poriewater dat onder hoge druk (20-30 Mpa) uit bentonieten is geperst die gedurende vier jaar bij hoge temperatuur (250°C) en bij een hoog zoutgehalte (0.9 M) zijn behandeld. Het betreft hier Griekse (Milos), Tsjechische, Indiase, Spaanse en Amerikaanse (Wyoming) bentonieten (voor details zie Fernandez et al., 2022). Voor het referentiemonster van de Wyoming (MX-80) bentoniet is het totaalgehalte van Mo bekend (3.1 mg/kg; AW: 1.5 mg/kg). De bijbehorende uitgeloopte concentratie in het poriewater bedraagt 0.67 mg/l. Voor de andere geteste bentonieten is de uitgeloopte hoeveelheid van Mo lager (Tsjechische bentoniet; 0.017 mg/kg) dan wel beneden detectiegrens (overige bentonieten). Van Cr zijn geen metingen gerapporteerd.
- Bradbury en Baeyens (2011) rapporteren resultaten van uitloogproeven waarbij Wyoming bentoniet (MX-80) onder normale temperatuur en druk is gesuspenderd in zogenaamd artificieel poriewater met een verhoogd zoutgehalte (0.7 M; iets zouter dan zeewater), bij een hoge vloeistof-vaste stofverhouding (L/S 100 l/kg). De twee geteste monsters bevatten resp. 5.2 en 10.4 mg Cr/kg (AW: 55 mg/kg) en 3.3 en 3.1 mg/kg Mo (AW: 1.5 mg/kg). Na evenwichtinstelling werd de samenstelling van de oplossing gemeten met Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry (ICP-MS), een methode waarmee zeer lage concentraties kunnen worden gemeten. Uitgeloopte concentraties van Cr waren niet meetbaar (<0.001 mg/l). Uitgeloopte concentraties van Mo waren laag (0.02 mg/l = 20 µg/l).
- Voorts zijn er enkele uitloogproeven gerapporteerd waarbij Amerikaanse (Wyoming) bentoniet is gesuspenderd bij een vloeistof/vaste stof ratio (L/S ratio) van 100 l/kg in gedemineraliseerd water, bij normale temperatuur en druk (Karnland et al., 2011). In de uitloogproeven (n=3) waren uitgeloopte concentraties van Mo niet detecteerbaar bij totaalgehalten van Mo rond 2.4 mg/kg (AW; 1.5 mg/kg). In deze proeven zijn geen metingen voor Cr gerapporteerd. Opgemerkt wordt dat de detectiegrens in deze proeven niet is gerapporteerd, maar vermoedelijk hoog heeft gelegen waardoor lage concentraties wellicht niet detecteerbaar zijn geweest.

Samenvattend is er voor Cr in de studie van Bradbury en Baeyens (2011) geen uitloging vastgesteld, hetgeen overeenkomt met het verwachte immobiele karakter van Cr[III].

Voor Mo is in de eerste twee genoemde studies een zekere mate van uitloging vastgesteld, overeenkomend met het verwachte tamelijk mobiele gedrag van Mo[VI]. Uit Fernandez et al. (2022) blijkt dat onder extreme condities (hoge temperatuur, druk, zoutgehalte, tijd) de concentratie van Mo in poriewater goed

Datum

7 april 2023

Onze referentie

M10632

Blad

11/16

meetbaar is (0.67 mg/l). Echter, deze uitgeloopte concentratie naar het poriewater vertegenwoordigt slechts ~1% van het gehalte in de bentoniet (0.03 mg/kg)⁷. De concentratie van 0.67 mg/l (670 µg/l) in het poriewater kan in absolute zin als hoog worden gekwalificeerd (vergelijk met interventiewaarde grondwater: 300 µg/l), maar de condities van de beschreven proeven zijn niet representatief voor c.q. vertaalbaar naar uitloging in de toepassingscondities van bentoniet als afdichtingsmateriaal in de bodem conform BRL 5079.

Bij condities waarbij bentoniet tot hoge L/S-waarden (L/S 100 l/kg) is gesuspenderd in een oplossing met een verhoogd zoutgehalte (Bradbury en Baeyens, 2011), is de opgeloste concentratie van Mo laag (20 µg/l) maar de totale uitgeloopte hoeveelheid relatief hoog (2 mg/kg, overeenkomend met ca. 63% van de samenstellingswaarde van 3.1 mg/kg; vergelijk ter indicatie met de maximale emissiewaarde voor bouwstoffen van 1 mg/kg). Metingen in suspensies met bentoniet kunnen representatief zijn voor de omstandigheden in een boorspoeling. Mogelijke effecten van een hoog zoutgehalte op de uitloging van Mo zoals in de boven beschreven proef kunnen aan de orde zijn in situaties met zout grondwater. Echter, L/S waarden in boorspoelingen met 3 tot 10 massa-% bentoniet⁴ zijn aanzienlijk lager (omgerekend 9 tot 30 l/kg) dan in de bovenbeschreven proef. Bij lagere L/S waarden zijn uitgeloopte hoeveelheden (in mg/kg en als percentage van de samenstellingswaarde) eveneens lager. Bedacht moet worden dat boorspoelingen worden teruggewonnen (KIWA, 2021), waardoor kan worden beargumenteerd dat alleen de eigenschappen van de restfractie die in de bodem achterblijft van belang is voor de mogelijke uitloging naar grondwater.

Samenvattend zijn de resultaten uit de internationale literatuur zeer schaars en vanwege de afwijkende proefcondities, niet representatief voor toepassingscondities van bentoniet conform BRL 5079 en de te verwachten uitloogmechanismen. De resultaten zijn bovendien niet goed vergelijkbaar met resultaten van uitloogproeven uit het Rbk en laten zich daarom ook niet goed vergelijken met maximale emissiewaarden uit de Rbk.

Is de hypothese gerechtvaardigd dat bentoniet met gehalten voor Cr en Mo tot klasse “wonen” niet leidt tot een mate van uitloging die de grondwaterkwaliteit kan bedreigen?

Het eventuele risico van gehalten van Cr en Mo in bentoniet tussen AW en klasse Wonen is vooral gelegen in de mogelijke uitloging en verspreiding van stoffen in het grondwater. De volgende aspecten die hierboven zijn geïntroduceerd worden meegewogen om te bepalen of dit leidt tot een mate van uitloging die de grondwaterkwaliteit kan bedreigen:

- Uit de aangeleverde en de in de literatuur gevonden gegevens blijkt dat het gehalte van Cr in sommige buitenlandse bentonieten hoger is dan de AW en soms de kwaliteitseis voor klasse Wonen overschrijdt. Voor Mo zijn er in dit onderzoek gehalten gevonden die overwegend tussen 2-5 mg/kg liggen

⁷ L/S waarde poriewater 0.045 l/kg * concentratie in poriewater 0.67 mg/l = 0.03 mg/kg.

Datum

7 april 2023

Onze referentie

M10632

Blad

12/16

(oftewel enkele malen de AW), tot maximaal 7 mg/kg. De maximale gehalten zijn echter nog ruim een factor 10 lager dan de kwaliteitseis voor klasse Wonen (88 mg/kg) en roepen de vraag op of hogere gehalten Mo representatief zijn voor bentonieten op de Nederlandse markt en/of überhaupt voorkomen in bentoniet. Op basis van de aangeleverde gegevens en de gevonden literatuur moeten we vooralsnog aannemen dat dit niet het geval is.

- Het is zeer waarschijnlijk dat Cr in bentoniet zich in de immobiele vorm van Cr[III] bevindt en niet uitloogbaar is. Mo bevindt zich waarschijnlijk in de tamelijk mobiele vorm van [Mo(VI)].
- De weinige in de literatuur beschikbare uitlooggegevens van bentoniet laten zich vanwege de afwijkende proefcondities niet rechtstreeks vergelijken met maximale emissiewaarden zoals die in de Rbk gelden voor bouwstoffen op basis van de uitloogproeven NEN7373 of NEN7375, en zijn niet representatief voor de toepassingscondities van bentoniet conform BRL 5079. Voor Cr is in de beschikbare proeven geen uitloging vastgesteld, overeenkomstig het verwachte mobiele gedrag van de dominante chemische vorm, Cr[III], en de wijze waarop dit vermoedelijk in de klei gebonden is. Voor Mo is in de beschikbare literatuur uitloging vastgesteld, maar zijn de gemeten (beperkte) uitgeloopte concentraties moeilijk te vertalen naar toepassingscondities conform BRL 5079.
- Als gevolg van de lage doorlatendheid van bentoniet in toepassingen waarin het een waterkerende functie heeft, zal er nagenoeg geen doorstroming van grondwater plaatsvinden maar zal het grondwater voornamelijk langs de bentoniet stromen. Het bentoniet gedraagt zich dan als een “stagnante zone” en eventuele uitloging van stoffen die in de klei zijn “opgesloten” vindt plaats door diffusiecontrole. De consequentie van diffusiecontrole is dat eventueel uitgeloopte concentraties van stoffen relatief laag zullen zijn ten opzichte van de voor uitloging beschikbare concentratie van een stof in het product. Uitzonderingen zijn afdichtingen waarbij de bentoniet een hogere doorlatendheid heeft dan een omringende kleilaag. Bij grote hydraulische gradiënten kan er dan een situatie ontstaan van doorstroming en een daardoor verhoogde uitloging. De (in ander onderzoek) berekende mate van doorstroming in een dergelijke situatie is echter laag waardoor de uitloging naar verwachting beperkt is. Bovendien is de verwachting dat dit scenario in de praktijk niet dominant zal zijn.
- Boorspoelingen met bentoniet worden na gebruik teruggewonnen en afgevoerd en/of geregenereerd, maar een relatief kleine hoeveelheid zal achterblijven in bodem, voornamelijk tussen de boorgatwand en de getrokken buis. Door het te verwachten kleine volume van de restanten, de te verwachten beperkte emissies en gehalten van Mo die gelimiteerd zijn tot enkele malen AW (zie eerste aandachtspunt), zal de uitgeloopte vracht naar verwachting klein zijn. Daardoor is er vooralsnog onvoldoende aanleiding om te veronderstellen dat deze toepassing leidt tot aantasting van de grondwaterkwaliteit.
- Bentoniet is een vanuit geochemisch opzicht stabiel product dat niet aan chemische verwerking blootstaat, en waarvan de afdichtende eigenschappen op de lange termijn naar verwachting behouden blijven.

Datum

7 april 2023

Onze referentie

M10632

Blad

13/16

Conclusie

Op grond van de bovenstaande overwegingen concluderen we, op basis van de huidige inzichten en beschikbaarheid van informatie, dat de hypothese gerechtvaardigd is dat de huidige kwaliteit van in NL toegepaste bentoniet (d.w.z. Cr tot klasse Wonen en Mo tot enkele malen AW) geen bedreiging vormt voor de grondwaterkwaliteit bij toepassing conform BRL 5079. Risico's voor de grondwaterkwaliteit zijn eveneens onwaarschijnlijk wanneer klasse Wonen als samenstellingseis voor Mo in bentoniet zou gelden, aangezien er in de beschikbare literatuur geen bentonieten zijn gevonden met gehalten van Mo die reiken tot klasse Wonen. Bij deze conclusies tekenen we aan dat meer meetgegevens wenselijk zijn voor een nauwkeuriger beoordeling (zie aanbevelingen).

Aanbevelingen

- Hoewel bentoniet in de huidige Rbk beoordelingssystematiek beoordeeld wordt op basis van samenstelling, biedt een beoordeling op basis van uitloging een directer beeld in relatie tot de vraagstelling van dit onderzoek. We bevelen de sector daarom aan om te onderzoeken of een aangepaste diffusieproef kan worden uitgevoerd op bentonieten met verschillende samenstellingen, bij voorkeur volgens Annex A in EN-16637-2. De resultaten daarvan kunnen *ter indicatie* worden getoetst aan de maximale emissiewaarden voor vormgegeven bouwstoffen in Bijlage B van de Rbk. Uiteraard kan daarbij naar een bredere range van metalen gekeken worden die in relatief hoge concentraties in bentoniet voorkomen. Experimentele gegevens die voldoen aan de maximale emissiewaarden voor vormgegeven bouwstoffen zouden de acceptatie van bentoniet als afdichtmateriaal verder kunnen ondersteunen.
- Gebleken is dat de bodemtypecorrectie een grote invloed heeft op de te toetsen gehalten van metalen in bentoniet. In hoeverre de bodemtypecorrectie en de bepalingsmethode voor lutumgehalte in de Rbk op inhoudelijke gronden van toepassing zijn op buitenlandse bentoniet verdient nader onderzoek.

Referenties

- Arslan, M., Abdioğlu, E., Kadir, S., 2010. Mineralogy, geochemistry, and origin of bentonite in upper Cretaceous pyroclastic units of the Tirebolu area, Giresun, Northeast Turkey. *Clays Clay Miner.* 58, 120–141. <https://doi.org/10.1346/CCMN.2010.0580112>
- Bradbury, M.H., Baeyens, B., 2011. Physico-chemical characterisation data and sorption measurements of Cs, Ni, Eu, Th, U, Cl, I and Se on MX-80 bentonite, Paul Scherrer Institute (PSI), Nagra Technischer Bericht.
- Brookins, D.G., 1988. Eh-pH Diagrams for Geochemistry. Springer-Verlag, Berlin.
- Buma, J.T., Bus, S.A.R., Harting, R., Zaadnoordijk, W.J., 2021. Karakterisering van de doorlatendheid van de ondiepe ondergrond van Noord-Nederland. TNO R10310.
- CEN/TC351, 2014. EN 16637-2: Construction products - Assessment of release of dangerous substances - Part 2: Horizontal dynamic surface leaching test.
- Curti, E., Wersin, P., 2002. Assessment of Porewater Chemistry in the Bentonite Backfill for the Swiss SF/HLW Repository. NAGRA / Paul Scherrer Institute (PSI), TR-02-09.
- De Boer, C. V, Griffioen, J., Menkovic, A., Van Vliet, M.E., Zaadnoordijk, W.J., 2021.

- Grondwaterkwaliteitsrisico's van bodemenergiesystemen door doorboren van kleilagen in de Brabantse situatie. TNO rapport 2021 R11454.
- Dijkstra, J.J., 2007. Development of a consistent geochemical modelling approach for leaching and reactive transport processes in contaminated materials. PhD Thesis, Wageningen University and Research Centre, Department of Soil Quality.
- Dijkstra, J.J., Meeussen, J.C.L., Comans, R.N.J., 2009. Evaluation of a generic multi-surface sorption model for inorganic soil contaminants. *Environ. Sci. Technol.* 43, 6196–6201. <https://doi.org/10.1021/es900555g>
- Dutta, J., Mishra, A.K., 2015. A study on the influence of inorganic salts on the behaviour of compacted bentonites. *Appl. Clay Sci.* 116–117, 85–92. <https://doi.org/10.1016/j.clay.2015.08.018>
- Estokova, A., Palascakova, L., Kanuchova, M., 2018. Study on Cr(VI) leaching from cement and cement composites. *Int. J. Environ. Res. Public Health* 15, 1–13. <https://doi.org/10.3390/ijerph15040824>
- European Chemicals Agency (ECHA), 2023. Substance Infocard - Chromium (VI) [WWW Document]. URL <https://echa.europa.eu/nl/substance-information/-/substanceinfo/100.132.559> (accessed 2.24.23).
- Fendorf, S.E., 1995. Surface reactions of chromium in soils and waters. *Geoderma* 67, 55–71. [https://doi.org/10.1016/0016-7061\(94\)00062-F](https://doi.org/10.1016/0016-7061(94)00062-F)
- Fernandez, A.M., Marco, J.F., Nieto, P., Leon, F.J., Robredo, L., Clavero, M.A., Cardona, A.I., Fernandez, S., Svensson, D., Sellin, P., 2022. Characterization of Bentonites from the In Situ ABM5 Heater Experiment at Äspö Hard Rock Laboratory, Sweden. *Minerals* 12. <https://doi.org/https://doi.org/10.3390/min12040471>
- Inspectie Leefomgeving en Transport (ILT), 2021. Signaalrapportage - Risico's bij de aanleg van gesloten bodemenergiesystemen. Inspectie Leefomgeving en Transport (ILT), Ministerie van Infrastructuur en Waterstaat.
- Kadir, S., Kùlah, T., Erkoyun, H., Uyanık, N.Ö., Eren, M., Elliott, W.C., 2021. Mineralogy, geochemistry, and genesis of bentonites in Upper Cretaceous pyroclastics of the Bereketli member of the Reşadiye Formation, Reşadiye (Tokat), Turkey. *Appl. Clay Sci.* 204. <https://doi.org/10.1016/j.clay.2021.106024>
- Karnland, O., 2010. Chemical and mineralogical characterization of the bentonite buffer for the acceptance control procedure in a KBS-3 repository. Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co (SKB), TR-10-60.
- Karnland, O., Olsson, S., Nilsson, U., 2006. Mineralogy and sealing properties of various bentonites and smectite-rich clay materials. Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co (SKB) Technical Report TR-06-30.
- Karnland, O., Olsson, S., Sanden, T., Faith, F., Jansson, M., Eriksen, T.E., Svardstrom, K., 2011. Long term test of buffer material at the Aspo HRL, LOT project. Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co. (SKB), Technical Report, TR-09-31.
- Khoury, H.N., Al-Zoubi, A.S., 2014. Origin and characteristics of Cr-smectite from Suweileh area, Jordan. *Appl. Clay Sci.* 90, 43–52. <https://doi.org/10.1016/j.clay.2014.01.004>
- KIWA, 2021. BRL 5079 (versie juni 2021) - Nationale beoordelingsrichtlijn Zwellkleipproducten voor toepassing als afdichtingsmateriaal in de bodem. versie 21 juni 2021.
- Klemm, W.A., 1994. Hexavalent chromium in Portland cement. *Cem. Concr. Aggregates* 16, 43–47. <https://doi.org/10.1520/cca10560j>
- Kosson, D.S., van der Sloot, H.A., Sanchez, F., Garrabrants, A.C., 2002. An integrated framework for evaluating leaching in waste management and utilization of secondary materials. *Environ. Eng. Sci.* 19, 159–204.
- Lee, C., Park, S., Lee, D., Lee, I.M., Choi, H., 2014. Viscosity and salinity effect on thermal performance of bentonite-based grouts for ground heat exchanger. *Appl. Clay Sci.* 101, 455–460. <https://doi.org/10.1016/j.clay.2014.09.008>
- Mol, G., Spijker, J., van Gaans, P.F.M., Romkens, P.F.A.M., 2012. Geochemische Bodematlas van Nederland. Wageningen Academic Publishers.

- NEN, 2010. NTA 8888: Bepaling van de doorlatendheidscoëfficiënt na maximale aantasting van zouten op bentoniethoudende afdichtingen in IBC-werken.
- NEN, 2006. NEN 7347: Leaching characteristics of solids earthy and stony building and waste materials - Leaching tests - Determination of the leaching of inorganic components from compacted granular materials.
- Nieuwenhuis, R.H., Lame, F.P.J., 2006. Overkoepelend rapport van het onderzoek naar de samenstelling en emissie van bijzondere parameters in grond. TNO Geological Survey of The Netherlands, TNO Report 2006-U-R0002/B.
- Olsson, S., Karnland, O., 2011. Mineralogical and chemical characteristics of the bentonite in the A2 test parcel of the LOT field experiments at Äspö HRL, Sweden. *Phys. Chem. Earth* 36, 1545–1553. <https://doi.org/10.1016/j.pce.2011.10.011>
- Olsson, S., Karnland, O., 2009. Characterisation of bentonites from Kutch, India and Milos, Greece – some candidate tunnel back-fill materials? Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co. (SKB), Technical report R-09-53.
- Oze, C., Bird, D.K., Fendorf, S., 2007. Genesis of hexavalent chromium from natural sources in soil and groundwater. *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* 104, 6544–6549. <https://doi.org/10.1073/pnas.0701085104>
- Palmer, C.D., Puls, R.W., 1994. Natural Attenuation of Hexavalent Chromium in Groundwater and Soils, EPA Ground Water Issue. United States Environmental Protection Agency, Office of Research and Development, Office of Solid Waste and Emergency Response EPA154015-941505. <https://doi.org/10.1111/j.1745-6592.1987.tb01071.x>
- SIKB - Stichting Infrastructuur Kwaliteitsborging Bodembeheer, 2019. Beoordelingsrichtlijn 11000 en protocol 11001: Ontwerp, realisatie, beheer en onderhoud ondergronds deel van bodemenergiesystemen.
- SIKB - Stichting Infrastructuur Kwaliteitsborging Bodembeheer, 2018. Protocol 2101 - Mechanisch boren.
- Smedley, P.L., Kinniburgh, D.G., 2017. Molybdenum in natural waters: A review of occurrence, distributions and controls. *Appl. Geochemistry* 84, 387–432. <https://doi.org/10.1016/j.apgeochem.2017.05.008>
- Smedly, P.L., Kinniburgh, D.G., 2002. A review of the source, behaviour and distribution of arsenic in natural waters. *Appl. Geochemistry* 17, 517–568.
- Spijker, J., van Vlaardingen, P.L.A., Mol, G., 2008. Achtergrondconcentraties en relatie met bodemtype in de Nederlandse bodem, RIVM rapport 711701074/2008.
- Sposito, G., 2008. *The Chemistry of Soils*. Oxford University Press.
- Svensson, D., Dueck, A., Nilsson, U., Olsson, S., Sandén, T., Lydmark, S., Jägerwall, S., Pedersen, K., Hansen, S., 2011. Alternative buffer material. Status of the ongoing laboratory investigation of reference materials and test package 1. Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co (SKB), TR-11-06.
- Unceta, N., Séby, F., Malherbe, J., Donard, O.F.X., 2010. Chromium speciation in solid matrices and regulation: A review. *Anal. Bioanal. Chem.* 397, 1097–1111. <https://doi.org/10.1007/s00216-009-3417-1>
- van der Sloot, H.A., 2000. Comparison of the characteristic leaching behavior of cements using standard (EN 196-1) cement mortar and an assessment of their long-term environmental behavior in construction products during service life and recycling. *Cem. Concr. Res.* 30, 1079–1096. [https://doi.org/10.1016/S0008-8846\(00\)00287-8](https://doi.org/10.1016/S0008-8846(00)00287-8)
- van der Sloot, H.A., Dijkstra, J.J., Hjelmar, O., Spanka, G., Bluyssen, P., Giselsson, S., 2008. Evaluation of a horizontal approach to assess the possible release of dangerous substances from construction products in support of the requirements of the construction products directive. Energy Research Centre of the Netherlands (ECN), Petten, The Netherlands, ECN report ECN-E--08-089.
- Zhang, J.R., Xu, M.D., Christidis, G.E., Zhou, C.H., 2020. Clay minerals in drilling fluids: functions and challenges. *Clay Miner.* 55, 1–11. <https://doi.org/10.1180/clm.2020.10>

TNO PUBLIEK

Ondertekening

Datum
7 april 2023

Onze referentie
M10632

Naam en paraaf tweede lezer

Blad
16/16

Prof. dr. J. Griffioen

Ondertekening

Autorisatie vrijgave

Dr. ir. J.J. Dijkstra
Auteur

Drs. D. Maljers
Research Manager