

DOI: 10.11779/CJGE201612007

考虑 Klinkenberg 效应的压实膨润土渗气特性研究

秦冰^{1,2}, 陆颀¹, 张发忠¹, 陈正汉¹, 刘月妙³, 王驹³

(1. 后勤工程学院国防建筑规划与环境工程系, 重庆 401311; 2. 西南科技大学核废物与环境安全国防重点学科实验室, 四川 绵阳 621010;
3. 核工业北京地质研究院, 北京 100029)

摘要: 利用非饱和三轴渗气仪研究了压实高庙子膨润土的渗气特性。发现当渗气系数小于 10^{-14} m^2 时, 压实膨润土中的 Klinkenberg 效应较为显著, 渗气系数会随气压力的增大而降低; 气体滑脱因子随 Klinkenberg 渗气系数与体积含气率之比的变化满足幂函数关系, 试验得到的二者之间关系与干密度、含水率无关, 并与 Klinkenberg 理论模型相近; Klinkenberg 渗气系数与体积含气率在双对数坐标中呈线性关系, 其斜率与含水率基本无关。基于试验规律, 建立了考虑 Klinkenberg 效应的高庙子膨润土非饱和渗气系数的数学模型。

关键词: 膨润土; 渗气特性; Klinkenberg 效应; 高放废物

中图分类号: TU43 文献标识码: A 文章编号: 1000-4548(2016)12-2194-09

作者简介: 秦冰(1984-), 男, 博士, 讲师, 主要从事非饱和土力学与高放废物地质处置领域的研究。E-mail: bingqin1984@163.com。

Gas permeability of compacted bentonite considering Klinkenberg effect

QIN Bing^{1,2}, LU Yang¹, ZHANG Fa-zhong¹, CHEN Zheng-han¹, LIU Yue-miao³, WANG Ju³

(1. Department of Architecture and Environmental Engineering, Logistical Engineering University, Chongqing 401311, China;

2. Fundamental Science on Nuclear Wastes and Environmental Safety Laboratory, Southwest University of Science and Technology, Mianyang 621010, China; 3. Beijing Research Institute of Uranium Geology, Beijing 100029, China)

Abstract: The gas permeability of compacted GMZ bentonite is studied using the triaxial gas permeameter. It is found that the Klinkenberg effect exists when the gas permeability is lower than 10^{-14} m^2 . A power relationship is observed between the Klinkenberg slippage factor and the ratio of the Klinkenberg permeability to the air-filled porosity. The relationship is independent on dry density and water content, and is almost identical with the Klinkenberg model. In the double-log scales, there is a linear relationship between the Klinkenberg permeability and the air-filled porosity, of which the slope is almost independent on water content. Based on the test results, a model for unsaturated gas permeability is proposed, in which the Klinkenberg effect is taken into account.

Key words: bentonite; gas permeability; Klinkenberg effect; high-level radioactive waste

0 引言

随着中国核电事业的飞速发展, 乏燃料及其后处理产生的玻璃固化体等高放废物的地质处置问题得到日益重视。在高放废物地质处置库中, 废物罐与围岩之间通常设置压实膨润土作为缓冲/回填层^[1]。在高放废物释热与地下水浸润的共同作用下, 压实膨润土中的水分场变化规律非常复杂^[2-3]。已有研究表明, 水蒸气运动对压实膨润土中的水分场变化会起到重要的作用^[4-5], 而水蒸气运动是与孔隙气(包括水蒸气与干燥空气)的渗透密切相关。一方面, 在压力梯度作用下孔隙气渗透引起的水蒸气对流是水蒸气运动的一种主要形式^[6]; 另一方面, 孔隙气压力增大会抑制水蒸气的扩散, 进而导致靠近废物罐区域的膨润土饱和更为

迅速^[7-8]。因此, 有必要对压实膨润土中的气体渗透特性加以研究。

目前关于膨润土渗气特性的研究报道相对较少。Shan 等^[9]、Didier 等^[10]、Bouazza 等^[11]、Vangpaisal 等^[12]均研究了处于低密度范围内的膨润土防水垫(GCL)的渗气系数变化规律; Villar^[13]使用非稳态法研究了不同压实条件下 FEBEX 膨润土的渗气特性; 刘龙波等^[14]对国内 3 种膨润土渗气系数随孔隙度与含水率的变化进行了研究。通过对上述文献中膨润土渗气试验结果的整理分析, 发现膨润土的渗气系数会低

基金项目: 国家自然科学基金项目(11502299, 11272353); 核废物与环境安全国防重点学科实验室开放基金项目(13zxmk03)

收稿日期: 2015-10-10

至 $10^{-15} \sim 10^{-18} \text{ m}^2$, 而文献报道中的其它非膨胀性或弱膨胀性土的渗气系数通常高于 10^{-13} m^2 [6, 15-21]。渗气系数越小, 意味着含气孔隙的半径会越小, 当含气孔隙半径接近气体分子平均自由程时, 渗气系数在宏观上将表现出与气压力的相关性, 即 Klinkenberg 效应 [22]。当渗气系数小于 10^{-15} m^2 时, 不少学者在不同的低渗透性岩石中均发现存在明显的 Klinkenberg 效应 [23-27], 但现有的膨润土渗气特性研究并未对 Klinkenberg 效应加以关注。

本文以中国高放废物地质处置库首选缓冲/回填材料高庙子膨润土为对象, 利用非饱和三轴渗气仪研究其渗气特性变化规律, 探讨压实膨润土中的 Klinkenberg 效应, 分析渗气系数随体积含气率的变化及气相的固有与相对渗透系数。

1 考虑 Klinkenberg 效应的渗气系数计算原理

通常采用 Darcy 定律描述土中流体的渗流, 对于气体而言, Darcy 定律可表达为

$$v_g = -\frac{k_g}{\mu_g} \nabla p_g, \quad (1)$$

其中, v_g 为气体的表观流速, p_g 为气体绝对压力, k_g 为渗气系数 (m^2), μ_g 为气体的黏滞系数。

在 Darcy 定律中, 渗气系数是与气压力无关的; 但是 Darcy 定律仅适用于层流, 在层流中流体黏附于孔隙壁上, 即孔隙壁处的流速为零。对于低渗透性介质, 孔隙半径会接近气体分子平均自由程, 此时气体分子与孔隙壁之间碰撞作用将不可忽略, 孔隙壁处存在称之为“滑流”的附加流量, 渗气系数在宏观上呈现出与气压力的相关性, 这一现象称为 Klinkenberg 效应。Klinkenberg [22] 基于毛管模型给出渗气系数与气压力之间存在如下关系:

$$k_g = k_\infty \left(1 + \frac{b}{p_g} \right), \quad (2)$$

$$b = \frac{4}{\sqrt{2\pi}} \frac{\kappa T c}{d^2 r}, \quad (3)$$

其中, k_∞ 称为 Klinkenberg 渗透系数, b 称为气体滑脱因子, T 为绝对温度, κ 为 Boltzmann 常数, d 为气体分子直径, c 为无量纲常数, r 为孔隙半径。气体滑脱因子 b 是与气体性质相关的, 在后文分析中, 均为关于氮气的气体滑脱因子。

将式 (2) 代入式 (1), 可得考虑 Klinkenberg 效应的气体渗透方程如下:

$$v_g = -\frac{k_\infty}{\mu_g} \left(1 + \frac{b}{p_g} \right) \nabla p_g. \quad (4)$$

本文是基于轴向稳态法量测渗气系数, 即在试样两端施加恒定的气压力差, 通过量测达到稳态后的气体流量以计算渗气系数, 如图 1 所示。在图 1 中, p_1 , p_2 分别为试样进气端与出气端处的气体绝对压力 (相应的表压分别记为 P_1 , P_2), ρ_1 , ρ_2 分别为试样进气端与出气端处的气体密度, Q_1 , Q_2 分别为试样进气端与出气端处的气体体积流量, L 为试样长度, A 为试样底面积, q_m 为试样任意断面处的气体质量流量。可将试验所用的氮气视为理想气体, 根据理想气体状态方程, 气体密度 ρ_g 可表达为

$$\rho_g = \frac{p_g M_g}{RT}, \quad (5)$$

其中, R 为通用气体常数, M_g 为气体克分子量。

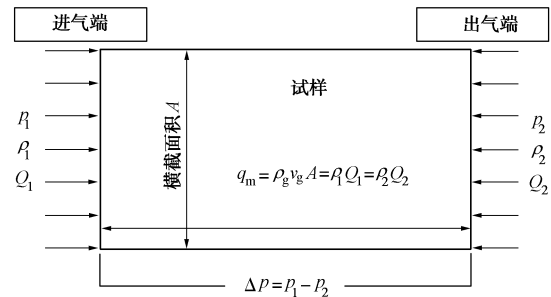


图 1 轴向稳态法量测渗气系数原理图

Fig. 1 Axial steady-state method for gas permeability measurement

当达到稳态之后, 试样各断面上的气体质量流量相等并保持恒定 (即 $\rho_g v_g A = \text{constant}$), 据此并考虑进、出气端处的气压力边界条件, 可将轴向稳态法渗气系数量测用以下常微分方程描述:

$$\begin{cases} (p_g + b) \frac{dp_g}{dx} = -\frac{\mu_g}{k_\infty} \frac{RT}{M_g} \frac{q_m}{A}, \\ p_g|_{x=0} = p_1, \quad p_g|_{x=L} = p_2 \end{cases}, \quad (6)$$

式中, x 为沿试样轴线方向的坐标, 坐标原点位于试样进气端处。假定已知出气端气体体积流量 Q_2 ($q_m = \rho_2 Q_2$), 由式 (6) 可得

$$Q_2 = \frac{k_\infty}{\mu_g} \frac{A}{L} \left[\frac{p_1^2 - p_2^2}{2p_2} + \frac{b(p_1 - p_2)}{p_2} \right]. \quad (7)$$

依据式 (7), 通过对不同进、出气压力组合 (p_1 , p_2) 下气体体积流量 Q_2 的拟合分析, 即可确定 k_∞ 与 b 。

若不考虑 Klinkenberg 效应, 则式 (7) 简化为

$$Q_2 = \frac{k_\infty}{\mu_g} \frac{A}{L} \frac{p_1^2 - p_2^2}{2p_2}. \quad (8)$$

由式 (8) 可知, 如果 Klinkenberg 效应不存在, Q_2 与 $(p_1^2 - p_2^2)/(2p_2)$ 之间的关系曲线应为过原点的直线, 可借此判断 Klinkenberg 效应是否显著。对比式 (7)、(8) 可知, 若在计算中不考虑 Klinkenberg 效应,

会高估实际的渗气系数, 且气体滑脱因子 b 越大 (即 Klinkenberg 效应越显著), 存在的误差越大。

另一方面, 为了简化计算, 在很多研究中是取平均气压力 $(p_1 + p_2)/2$ 来反映 Klinkenberg 效应, 即

$$k_g = k_\infty \left(1 + \frac{2b}{p_1 + p_2} \right) \quad (9)$$

此时, 式 (7) 可简化为

$$Q_2 = \frac{k_\infty \left(1 + \frac{2b}{p_1 + p_2} \right) A}{\mu_g L} \frac{p_1^2 - p_2^2}{2p_2} \quad (10)$$

根据式 (10), 可首先利用式 (8) 依次计算单个进、出气压力组合 (p_1, p_2) 下的渗气系数 k_g , 即得到不同平均气压力下的渗气系数 k_g , 然后再利用式 (9) 确定 k_∞ 与 b 。同时, 可利用渗气系数 k_g 是否随平均气压力 $(p_1 + p_2)/2$ 减小来判断 Klinkenberg 效应的显著性。应当指出, 该方法确定的 k_∞ , b 值与直接通过式 (7) 拟合确定的值并不一致, 为了便于区分, 分别称为“近似法”与“精确法”。

2 试验方法与试验方案

试验用土为高庙子膨润土 GMZ001, 其主要矿物为蒙脱石 (含量为 73.2%), 伴生矿物为石英、长石和 α -方英石, 另外还含有微量的伊利石和高岭石。其相对密度为 2.65 g/cm^3 , 液限为 325%, 塑限为 42%, 阳离子交换量 (CEC) 为 75 meq/100 g , 可交换阳离子包括 Na (35 meq/100 g)、Ca (24 meq/100 g)、Mg (15 meq/100 g)、K (1 meq/100 g)。

首先将高庙子膨润土在 110°C 下烘干 36 h, 然后采用喷雾法将其配至目标含水率, 选取的 5 个目标含水率分别为 7%, 10%, 12.5%, 15%, 18%, 静置 5 d 后再用于压制试样。试样直径为 39.1 mm , 高度为 40 mm , 利用 100 kN 压力机分两层静力压实, 压实速率为 0.5 mm/min , 压实目标干密度共 5 个, 分别为 1.2, 1.3, 1.4, 1.5, 1.6 g/cm^3 。共进行了 25 个试样的渗气试验, 各试样的实际物理性质指标、最大压实力列于表 1。

使用基于轴向稳态法的非饱和三轴渗气仪进行试验 (如图 2), 采用氮气作为渗透气体, 并配置了 3 支不同量程的精密气体流量计, 可保证在 $0.1 \sim 1000 \text{ ml/min}$ 范围内流量测量精度不大于量测值的 $\pm 3\%$, 有关该仪器的详细介绍可参见文献[8]。

试验过程中, 只控制进气端的气压力 p_1 , 出气端则直接与大气相通, 并量测出气端的气体体积流量 Q_2 。气压力与围压的控制分为 2 个阶段 (如图 3):

第一阶段, 进气压力 p_1 不改变, 逐级增加围压 σ_3 , 以消除制样过程中产生的初始裂隙对压实膨润土渗气系数的影响; 第二阶段, 逐级同步增加进气压力 p_1 与围压 σ_3 (即 $\Delta p_1 = \Delta \sigma_3$), 以研究渗气系数随气压力的变化规律 (即 Klinkenberg 效应)。

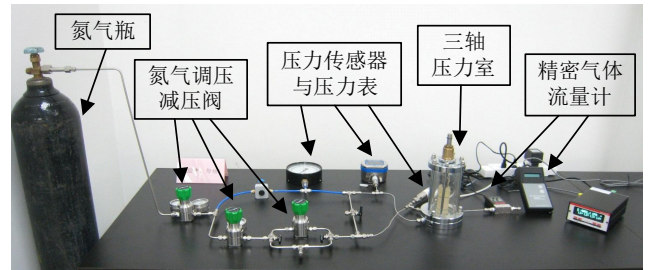


图 2 非饱和三轴渗气仪照片

Fig. 2 Photo of triaxial permeameter for gas permeability measurement

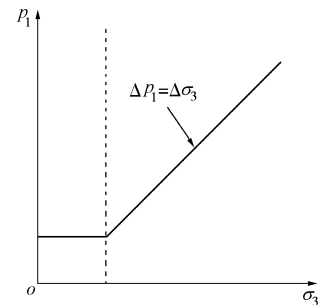


图 3 进气压力与围压控制路径

Fig. 3 Path for controlling upstream gas pressure and confining pressure

由表 1 可知, 部分试样 (特别是高干密度试样) 的制样压实应力很高, 最高可达 60 MPa 以上。当试样从制样模具中卸出时, 巨大的应力释放会在试样中造成微裂隙, 这些微裂隙是气体流动的快速通道。随着围压的逐渐增大, 微裂隙将逐渐闭合, 在宏观就表现为渗气系数的显著下降, 当微裂隙完全闭合或不再连通时, 渗气系数就达到相应的稳定值, 如图 4 所示 (图中纵坐标 k_g^i/k_g^1 为各级围压下渗气系数与第一级围压下渗气系数的比值)。同时, 由图 4 可知, 在进气压力 p_1 不变下, 试样干密度越大 (即制样压实应力越大), 渗气系数随围压增大的减小越为显著。

3 试验结果与分析

3.1 气压力对渗气系数的影响与 Klinkenberg 效应

试验得到的 Q_2 与 $(p_1^2 - p_2^2)/(2p_2)$ 之间的典型关系曲线如图 5 所示。对于高渗气性试样, Q_2 与 $(p_1^2 - p_2^2)/(2p_2)$ 之间的关系曲线基本为过原点的直线 (如图 5 (a)), 按照式 (8) 得到的不同平均气压力

表 1 各试样 Klinkenberg 渗气系数与气体滑脱因子
Table 1 Klinkenberg permeability and gas slippage factor

试样 编号	含水率 /%	干密度 /(g·cm ⁻³)	最大压实力 /kN	精确法		近似法		平均渗气系数 \bar{k}_g /(10 ⁻¹⁵ m ²)
				k_∞ /(10 ⁻¹⁵ m ²)	b /(10 ³ Pa)	k_∞ /(10 ⁻¹⁵ m ²)	b /(10 ³ Pa)	
A1	7.2	1.19	12.6	43.65	5.4	45.21	—	45.21
A2		1.29	21.6	17.52	16.3	18.97	—	18.97
A3		1.38	31.8	5.83	72.5	5.96	67.4	8.04
A4		1.47	57.7	1.16	189.1	1.26	159.2	2.16
A5		1.56	69.1	0.38	180.6	0.41	151.6	0.73
B1	10.5	1.18	11.1	43.78	—	43.78	—	43.78
B2		1.30	16.7	13.20	7.3	13.66	—	13.66
B3		1.40	30.6	2.79	85.8	3.02	63.9	3.89
B4		1.50	46.5	0.64	126.9	0.66	116.6	1.03
B5		1.60	72.4	0.10	215.9	0.11	197.3	0.21
C1	12.5	1.20	11.6	32.73	—	32.73	—	32.73
C2		1.30	16.6	12.97	—	12.97	—	12.97
C3		1.42	26.9	2.20	79.5	2.40	57.4	3.05
C4		1.50	44.3	0.47	93.3	0.50	76.8	0.69
C5		1.60	70.6	0.0054	2470.4	0.0085	1505.8	0.073
D1	14.7	1.21	18.4	30.68	—	30.68	—	30.68
D2		1.30	24.1	7.81	44.9	7.80	45.3	9.76
D3		1.40	33.2	1.85	77.96	1.97	62.5	2.58
D4		1.50	39.6	0.32	93.2	0.33	82.1	0.48
D5		1.60	58.5	0.012	683.5	0.0098	855.1	0.056
E1	18.4	1.20	17.5	21.81	—	21.81	—	21.81
E2		1.30	18.2	5.62	59.9	6.07	42.9	7.49
E3		1.40	20.5	1.03	65.13	1.03	64.5	1.40
E4		1.49	32.1	0.096	121.1	0.095	123.0	0.16
E5		1.60	53.4	0.0025	753.8	0.0025	743.3	0.012

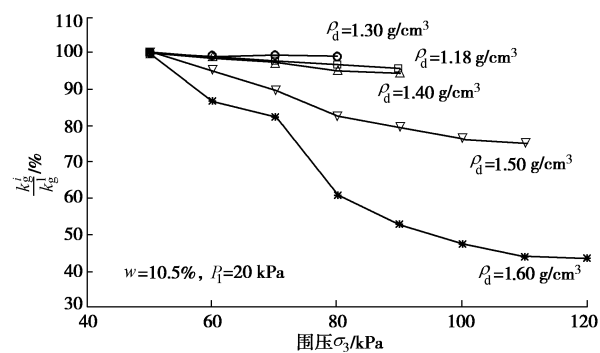


图 4 渗气系数减小率（相对第一级围压）随围压的变化
Fig. 4 Reduction of gas permeability with increasing confining pressure

下的渗气系数大致相同（如图 6（a）），即说明在高渗气性试样中 Klinkenberg 效应可忽略不计。随着试样渗气能力的下降， Q_2 随 $(p_1^2 - p_2^2)/(2p_2)$ 的变化逐渐由线性转变为非线性，二者之间的关系曲线呈上凸型（如图 5（b）），按照式（8）得到的渗气系数随平均气压力的增大而减小（如图 6（b）），Klinkenberg 效应的影响凸显。

表 1 列出了分别采用精确法和近似法得到的 Klinkenberg 渗气系数 k_∞ 与气体滑脱因子 b ，及按照式（8）得到的不同平均气压力下渗气系数的平均值 \bar{k}_g 。当渗气系数大于 10^{-14} m² 时，Klinkenberg 渗气系数 k_∞

与渗气系数的平均值 \bar{k}_g 基本相同；而当渗气系数小于 10^{-14} m² 时，渗气系数的平均值 \bar{k}_g 会高于 Klinkenberg 渗气系数 k_∞ 至少 30%。另一方面，考虑到压实膨润土中气压力通常在 1 个大气压至数百千帕之间变化，取 $p = 100, 200$ kPa， $b = 50$ kPa，根据式（2）可知，滑流分别将约占总流量的 33%，20%；当 Klinkenberg 渗气系数 k_∞ 小于 10^{-14} m² 时，试验得到的气体滑脱因子 b 均大于 50 kPa，滑流对气体总流量的贡献是不可忽略的。因此，在本文试验中，可认为 Klinkenberg 效应是否显著的界限渗气系数约为 10^{-14} m²。另外，由表 1 可知，较之近似法，精确法得到的 k_∞ 会更低、 b 会更高，但差异不大，后文中仅以精确法结果分析。

试验得到的平均渗气系数 \bar{k}_g 在 $10^{-12} \sim 10^{-17}$ m² 之间，与以往未考虑 Klinkenberg 效应下 FEBEX 膨润土（ $10^{-13} \sim 10^{-18}$ m²）^[13]、膨润土防水垫 GCL（ $10^{-12} \sim 10^{-19}$ m²）^[9-12] 的渗气系数试验结果大致在同一数量范围。在 Didier 等^[10]关于膨润土防水垫 GCL 的研究中，得到的 Q_2 与 $(p_1^2 - p_2^2)/(2p_2)$ 关系曲线出现了明显的非线性（且为上凸型），与本文试验结果一致；尽管原文作者未加以分析，但可认为存在 Klinkenberg 效应的影响。与之相反，在 Bouazza 等^[11]关于膨润土防水垫 GCL 的研究中，即使渗气系数低至 10^{-17} m²，气压力对渗气系数的影响仍可忽略，这可能与施加的气压力较小（最大不超过 40 kPa）及气体流动导致高含水率

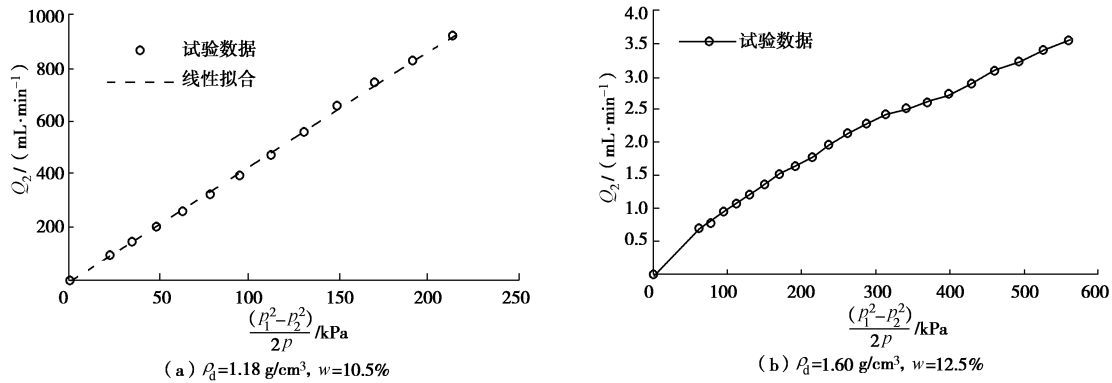
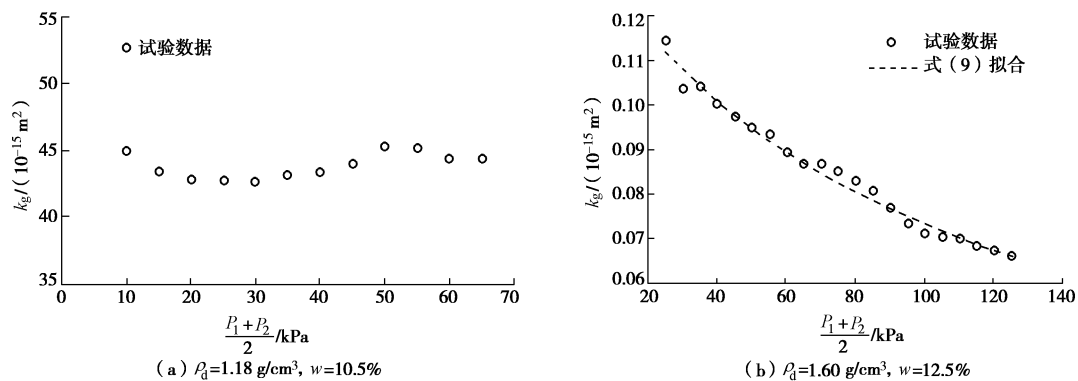
图5 Q_2 与 $(p_1^2 - p_2^2) / 2p_2$ 关系曲线Fig. 5 Variation of Q_2 with $(p_1^2 - p_2^2) / 2p_2$ 

图6 渗气系数随平均气压力的变化

Fig. 6 Variation of gas permeability with average gas pressure

下膨润土防水垫 GCL 的干燥有关。

3.2 气体滑脱因子与 Klinkenberg 渗气系数的关系

气体滑脱因子 b 随 Klinkenberg 渗气系数 k_∞ 的变化如图 7。随着渗气系数的降低, 气体滑脱因子 b 会有所增加, 即 Klinkenberg 效应的影响会愈加显著。尽管数据较为离散, 在双对数坐标中, 气体滑脱因子 b 与 Klinkenberg 渗气系数 k_∞ 之间大致存在唯一线性关系, 与干密度、含水率没有明显相关性, 其拟合公式如下:

$$b = 0.12k_\infty^{-0.39} \quad (R^2 = 0.80), \quad (11)$$

其中, k_∞ , b 的单位分别为 m^2 , Pa 。

在低渗透性岩石中, 不少学者也发现在双对数坐标中 b 与 k_∞ 之间呈线性关系; 在本文 Klinkenberg 渗气系数 k_∞ 范围 ($10^{-14} \sim 10^{-18} \text{ m}^2$) 内, Heid 等^[23]、Jones 等^[25]、Tanikawa 等^[26]分别给出了如下经验公式:

$$b = 0.11k_\infty^{-0.39} \quad (10^{-12} \text{ m}^2 \geq k_\infty \geq 10^{-17} \text{ m}^2), \quad (12)$$

$$b = k_\infty^{-0.33} \quad (10^{-14} \text{ m}^2 \geq k_\infty \geq 10^{-19} \text{ m}^2), \quad (13)$$

$$b = 0.15k_\infty^{-0.37} \quad (10^{-14} \text{ m}^2 \geq k_\infty \geq 10^{-20} \text{ m}^2)。 \quad (14)$$

式 (11) ~ (14) 亦在图 7 中示出, 本文拟合公式与 Heid 等、Jones 与 Owens 的经验公式相近, 而 Tanikawa 与 Shimamoto 的经验公式会略低于本文拟合公式, 但差异并不显著。

另一方面, 基于毛管模型, Klinkenberg 给出了气体滑脱因子 b 与 Klinkenberg 渗气系数 k_∞ 之间存在如下理论公式, 即 Klinkenberg 模型^[28]:

$$b = \frac{c}{\sqrt{3}\pi} \frac{\kappa T}{d^2} \left(\frac{k_\infty}{n} \right)^{-0.5} = 0.0054 \left(\frac{k_\infty}{n} \right)^{-0.5}, \quad (15)$$

式中, n 为孔隙率, d 取氮气的分子直径。根据低渗透性岩石的实测渗气数据, Sampath 等^[29]、Jones^[30]分别给出了与式 (15) 形式相同、指数相近的如下经验公式:

$$b = 0.0011 \left(\frac{k_\infty}{n} \right)^{-0.53}, \quad (16)$$

$$b = 0.021 \left(\frac{k_\infty}{n} \right)^{-0.447}。 \quad (17)$$

式 (15) ~ (17) 都是针对只含气、不含水的干燥介质提出的, 为了考虑孔隙水的影响, 用体积含气率 ϕ_g (即气体体积分数 V_g/V) 代替孔隙率 n 进行分析。试验得到的气体滑脱因子 b 随 k_∞/ϕ_g 的变化见图 8, 在双对数坐标中二者之间亦存在唯一线性关系 (与干密度、含水率没有明显的相关性), 其拟合公式如下:

$$b = 0.0061 \left(\frac{k_\infty}{\phi_g} \right)^{-0.5} \quad (R^2 = 0.85)。 \quad (18)$$

式 (18) 与改用 ϕ_g 的 Klinkenberg 模型差别较小 (10%左右), 而改用 ϕ_g 的 Sampath 等、Jones 经验公式则会明显低于式 (18) 及改用 ϕ_g 的 Klinkenberg 模型, 如图 8。较之 Sampath 等、Jones 的经验公式, 式 (18) 与 Klinkenberg 模型之间更好的一致性, 可能是因为相对于岩石, 压实膨润土中胶结作用较弱, 其孔隙结构更符合毛管模型。另外, 较之式 (11), 式 (18) 拟合相关系数更高, 更适宜于描述本文中气体滑脱因子 b 与 Klinkenberg 渗气系数 k_∞ 之间的关系。

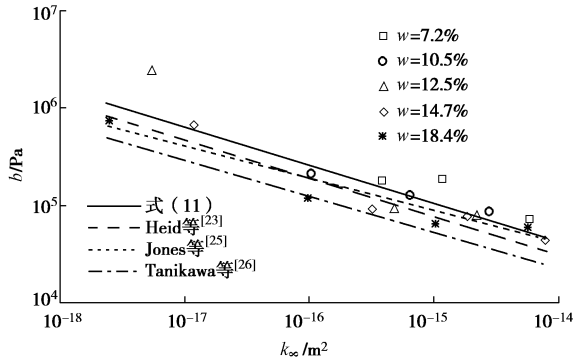


图 7 气体滑脱因子随 Klinkenberg 渗气系数的变化

Fig. 7 Relationship between gas slippage factor and Klinkenberg permeability

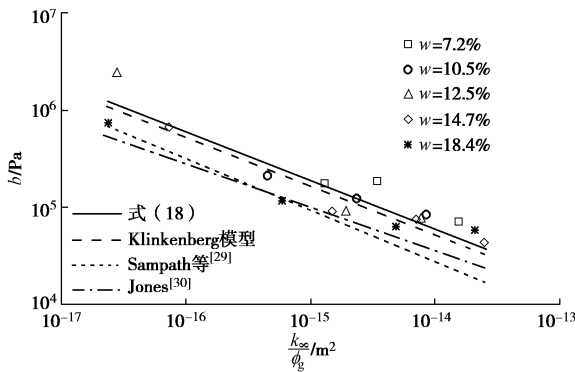


图 8 气体滑脱因子 b 随 k_∞/ϕ_g 的变化

Fig. 8 Relationship between gas slippage factor b and k_∞/ϕ_g

3.3 Klinkenberg 渗气系数与体积含气率之间关系

干密度变化与含水率变化均会导致体积含气率 ϕ_g 的变化。在相同干密度下, Klinkenberg 渗气系数 k_∞ 随体积含气率 ϕ_g 的变化 (由含水率变化引起) 如图 9, 二者在双对数坐标中呈线性关系, 即 k_∞ 与 ϕ_g 之间满足幂函数关系 ($k_\infty = A\phi_g^\eta$, A , η 为参数)。随着干密度的增大, 双对数坐标下 $k_\infty - \phi_g$ 曲线的斜率 (即参数 η) 亦在增大 (干密度 1.50 g/cm^3 下除外), 即干密度越大, k_∞ 随体积含气率 ϕ_g 的变化越为显著。

在相同含水率下, Klinkenberg 渗气系数 k_∞ 随体积含气率 ϕ_g 的变化 (由干密度变化引起) 如图 10, 在双对数坐标中, 二者亦呈线性关系, 且不同含水率下的

$k_\infty - \phi_g$ 曲线大致彼此平行, 即各含水率下的参数 η 基本相同。可采用如下方程统一表达不同含水率下 k_∞ 随 ϕ_g 的变化:

$$\frac{k_\infty}{k_\infty^{w*}} = \left(\frac{\phi_g}{\phi_g^{w*}} \right)^\eta, \quad (19)$$

其中, 参考点 $(\phi_g^{w*}, k_\infty^{w*})$ 可在当前含水率 w^* 对应的 $k_\infty - \phi_g$ 曲线上任意选取。若取各含水率下 Klinkenberg 渗气系数最大的点为参考点, 得到的 k_∞/k_∞^{w*} 随 ϕ_g/ϕ_g^{w*} 的变化如图 11, 含水率的影响基本不再存在, 参数 η 的拟合值为 8.72。

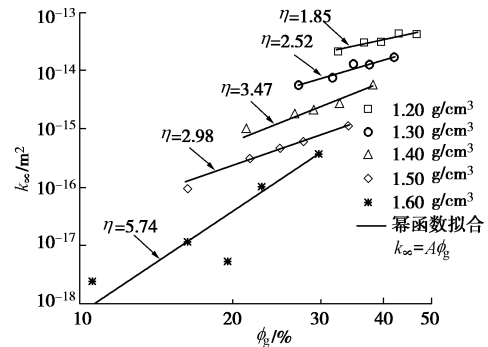


图 9 相同干密度下 Klinkenberg 渗气系数随体积含气率变化

Fig. 9 Variation of k_∞ with ϕ_g at same dry densities

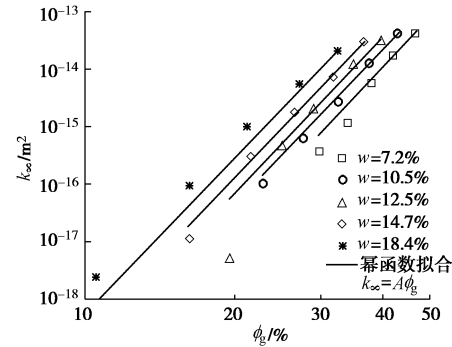


图 10 相同含水率下 Klinkenberg 渗气系数随体积含气率变化

Fig. 10 Variation of k_∞ with ϕ_g at same water contents

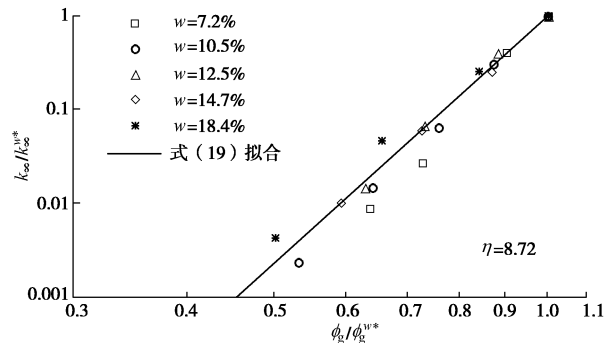


图 11 k_∞/k_∞^{w*} 随 ϕ_g/ϕ_g^{w*} 的变化

Fig. 11 Relationship between k_∞/k_∞^{w*} and ϕ_g/ϕ_g^{w*}

进一步, 将式 (18)、(19) 代入式 (2), 可得压实高庙子膨润土渗气系数数学模型如下:

$$k_g = k_{\infty}^w \left(\frac{\phi_g}{\phi_g^w} \right)^{8.72} \left(1 + 0.0061 \left(\frac{k_{\infty}^w (\phi_g)^{7.72}}{(\phi_g^w)^{8.72}} \right)^{-0.5} \frac{1}{p_g} \right) \quad (20)$$

在本文试验中, 体积含气率 ϕ_g 的变化不论是含水率还是干密度变化引起的, 其与 Klinkenberg 渗气系数在双对数坐标中均呈直线关系, 这与以往大多研究的规律是一致的^[6, 15-21]。参数 η 与孔隙结构相关, 可视为表征孔隙结构特征的参数^[31]。在一些非膨胀性介质中, Delage 等^[15]、Stoltz 等^[19]分别发现渗气系数与体积含气率之间关系是与体积含气率改变方式无关的, 参数 η 的取值具有唯一性。但是, 本文中 2 种体积含气率变化方式下, 参数 η 的取值却有显著不同 (分别为 1.85~5.74 与 8.72), 其取值范围更大意味着相应的孔隙结构变化更为复杂。Tang 等^[20]的研究也表明随着土黏性的增大, 由于存在复杂的微观结构变化, 参数 η 的取值范围会更大。

3.4 固有渗透系数与相对渗透系数

采用 Brooks-Corey 模型 (1964) 分析固有渗透系数与相对渗透系数, 若取残余饱和度为零, 则其液相、气相的相对渗透函数分别为^[32]

$$k_{rw} = \frac{k_w}{k_i^w} = S_w^{\left(\frac{2+3\lambda}{\lambda} \right)}, \quad (21)$$

$$k_{rg} = \frac{k_g}{k_i^g} = (1 - S_w)^2 - (1 - S_w)^2 S_w^{\left(\frac{2+\lambda}{\lambda} \right)}, \quad (22)$$

其中, k_i^w , k_i^g 分别为液相、气相的固有渗透系数, 即饱和渗水系数与完全干燥下的渗气系数, λ 为模型参数, S_w 为 (液相) 饱和度。在本文试验中, 未直接量测完全干燥下的渗气系数, 将其视为拟合参数。利用式 (22) 对不同干密度下的 Klinkenberg 渗气系数随饱和度变化进行拟合分析, Brooks-Corey 模型可以与实测数据较好的吻合, 典型结果如图 12。

通过拟合得到的气相固有渗透系数 k_i^g 随孔隙率 n 的变化如图 13, 二者之间大致服从指数函数关系, 这与以往液相固有渗透系数与孔隙率之间的关系是一致的, 其拟合方程为

$$k_i^g = 10^{0.13n-5.11} \quad (23)$$

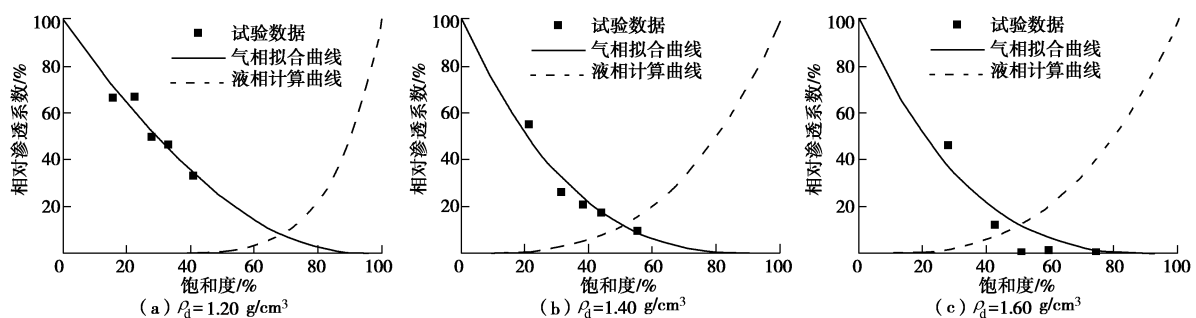


图 12 相对渗透系数随饱和度的变化

Fig. 12 Variation of relative permeability with degree of saturation

在图 13 中, 给出了 Wen^[33]报道的高庙子膨润土的液相固有渗透系数, 其远小于本文得到的气相固有渗透系数 (相差约 5 个数量级), 这与通常认为土中固有渗透系数与流体性质无关的认识是不一致的。对于 FEBEX 膨润土, Villar^[13]亦发现其气相固有渗透系数 (未考虑 Klinkenberg 效应) 会比液相固有渗透系数高约 8 个数量级。出现如此巨大差异的原因包括: 一是膨润土遇水后的微结构变化, 在恒体积条件下 (孔隙率不变), 膨润土遇水膨胀, 会导致大孔隙被逐渐填充并最终基本消失^[34-35]; 二是由于膨润土与水之间的强烈相互作用, 相当一部分水会被吸附在膨润土的表面^[36-37], 在压力梯度下吸附水是无法自由流动的, 导致“水可流动”的有效孔隙显著减小。另一方面, 即使在非膨胀性土中, 液相固有渗透系数 k_i^w 亦会低于气相固有渗透系数 k_i^g : Springer 等^[16]发现在玻璃球堆积体中 k_i^w 会比 k_i^g 低约 15%~25%, 在砂土中 k_i^w 比 k_i^g 则低近 1 个数量级; Kamiya 等^[18]给出在砂土中 k_i^w 会比 k_i^g 低 1~2 个数量级; 在粉土中, Tuli 等^[17]报道 k_i^w 会比 k_i^g 约低 2~3 个数量级。由上可推知, 随着黏性的增大, 气相固有渗透系数与液相固有渗透系数的差异呈增大的趋势。

正如 Brooks-Corey 模型, 通常认为水、气是在相同的孔隙分布结构中流动, 液相与气相相对渗透函数可采用相同的模型参数, 能够从液相相对渗透函数推知气相相对渗透函数, 或反之。若采用与气相相对渗透函数相同的参数 λ , 由式 (21) 可得不同干密度下的液相相对渗透系数如图 12, 其随饱和度的增大而一直增大。这与 Cui 等^[38]、Ye 等^[39]报道的膨润土非饱和相对渗水系数随饱和度先减小后增大的非单调变化规律是截然不同的, 意味着膨润土的液相与气相相对渗透系数无法相互推算。出现该现象的原因在于, 膨润土遇水后微结构会发生巨大改变^[34-37], 导致水、气流动对应的孔隙结构分布存在较大差异。另外, Kamiya 等^[18]与 Tuli 等^[17]在砂土与粉土中也发现难以使用统一的参数预测水、气相对渗透系数。

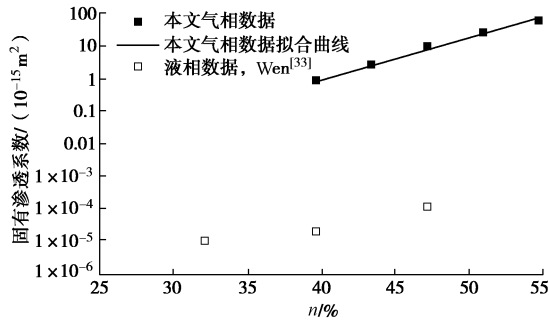


图 13 气相与液相固有渗透系数比较

Fig. 13 Comparison of intrinsic permeability with respect to gas and water

4 结论与建议

本文利用非饱和三轴渗气仪对压实高庙子膨润土的渗气特性进行了研究, 得到以下 4 点结论。

(1) 当渗气系数小于 10^{-14} m^2 时, 发现压实膨润土中 Klinkenberg 效应的影响较为显著, 渗气系数会随气压力的增大而降低; Klinkenberg 渗气系数越小, 气体滑脱因子越大, Klinkenberg 效应越显著。

(2) 气体滑脱因子随 Klinkenberg 渗气系数与体积含气率之商的变化满足幂函数关系, 试验得到的二者之间关系与干密度、含水率无关, 并与 Klinkenberg 理论模型相近。

(3) 在相同干密度下, Klinkenberg 渗气系数与体积含气率在双对数坐标中呈线性关系, 且干密度越大, 该直线的斜率越大; 在相同含水率下, Klinkenberg 渗气系数与体积含气率在双对数坐标中亦呈线性关系, 其斜率则与含水率基本无关; 通过引入不同含水率下的参考点, 建立了考虑 Klinkenberg 效应的压实高庙子膨润土渗气系数数学模型。

(4) Brooks-Corey 模型可以较好地模拟试验得到的渗气系数随饱和度的变化; 利用 Brooks-Corey 模型得到的气相固有渗透系数与孔隙率之间满足指数函数关系, 且其会显著高于高庙子膨润土液相固有渗透系数 (相差约 5 个数量级)。

参考文献:

- [1] PUSCH R. Geological storage of highly radioactive waste[M]. Berlin: Springer, 2008.
- [2] MARTÍN P L, BARCALA J M. Large scale buffer material test: Mock-up experiment at CIEMAT[J]. Engineering Geology, 2005, **81**: 298 - 316.
- [3] SVOBODA J, VASICEK R. Preliminary geotechnical results from the Mock-Up-CZ experiment[J]. Applied Clay Science, 2010, **47**: 139 - 146.
- [4] KRÖHN K P. New evidence for the dominance of vapour diffusion during the re-saturation of compacted bentonite[J]. Engineering Geology, 2005, **82**: 127 - 132.
- [5] CLEALL P J, SINGH R M, THOMAS H R. Vapour transfer in unsaturated compacted bentonite[J]. Géotechnique, 2013, **63**(11): 957 - 964.
- [6] MOLDRUP P, OLESEN T, KOMATSU T. Tortuosity, diffusivity, and permeability in the soil liquid and gaseous phases[J]. Soil Science Society of America Journal, 2001, **65**(3): 613 - 623.
- [7] COLLIN F, LI X L, RADU J P, et al. Thermo-hydro-mechanical coupling in clay barriers[J]. Engineering Geology, 2002, **64**: 179 - 193.
- [8] 秦冰. 非饱和膨润土的工程特性与热-水-力多场耦合模型研究[D]. 重庆: 后勤工程学院, 2014. (QIN Bing. Engineering properties of unsaturated bentonite and thermo-hydro-mechanical modelling of unsaturated soils[D]. Chongqing: Logistical Engineering University, 2014. (in Chinese))
- [9] SHAN H Y, YAO J T. Measurement of air permeability of geosynthetic clay liners[J]. Geotextiles and Geomembranes, 2000, **18**: 251 - 261.
- [10] DIDIER G, BOUAZZA A, CAZAUX D. Gas permeability of geosynthetic clay liners[J]. Geotextiles and Geomembranes, 2000, **18**: 235 - 250.
- [11] BOUAZZA A, VANGPAISAL T. An apparatus to measure gas permeability of geosynthetic clay liners[J]. Geotextiles and Geomembranes, 2003, **21**(2): 85 - 101.
- [12] VANGPAISAL T, BOUAZZA A. Gas permeability of partially hydrated geosynthetic clay liners[J]. Journal of Geotechnical and Geoenvironmental Engineering, 2004, **130**(1): 93 - 102.
- [13] VILLAR M V. Thermo-hydro-mechanical characterisation of a bentonite from Cabo de Gata: A study applied to the use of bentonite as sealing material in high level radioactive waste repositories[R]. Madrid: ENRESA Technical Publication, 2002.
- [14] 刘龙波, 王旭辉, 张自禄, 等. 不饱和膨润土中气体渗透研究[J]. 水文地质工程地质, 2002(6): 26 - 30. (LIU Long-bo, WANG Xu-hui, ZHANG Zi-lu, et al. Study on gas permeability of the unsaturated bentonites[J]. Journal of Hydrogeology and Engineering Geology, 2002(6): 26 - 30. (in Chinese))
- [15] DELAGE P, CUI Y J, DE LAURE E. Air flow through an

- unsaturated compacted silt[C]// Proceedings of the 2nd International Conference on Unsaturated Soils. Beijing, 1998.
- [16] SPRINGER D S, LOAICIGA H A, CULLEN S J, et al. Air permeability of porous materials under controlled laboratory conditions[J]. *Ground Water*, 1998, **36**(4): 558 - 565.
- [17] TULI A, HOPMANS J W, ROLSTON D E, et al. Comparison of air and water permeability between disturbed and undisturbed soils[J]. *Soil Science Society of America Journal*, 2005, **69**: 1361 - 1371.
- [18] KAMIYA K, BAKRIE R, HONJO Y. A new method for the measurement of air permeability coefficient of unsaturated soil[C]//Proceedings of the 4th International Conference on Unsaturated Soils. Carefree, 2006.
- [19] STOLTZ G, GOURC J-P, OXARANGO L. Liquid and gas permeabilities of unsaturated municipal solid waste under compression[J]. *Journal of Contaminant Hydrology*, 2010, **118**: 27 - 42.
- [20] TANG A M, CUI Y J, RICHARD G. A study on the air permeability as affected by compression of three French soils[J]. *Geoderma*, 2011, **162**: 171 - 181.
- [21] BERISSO F E, SCHJØNNING P, KELLER T, et al. Gas transport and subsoil pore characteristics: Anisotropy and long-term effects of compaction[J]. *Geoderma*, 2013, **195-196**: 184 - 191.
- [22] KLINKENBERG L J. The permeability of porous media to liquids and gases[C]// *Am Pet Inst Drill Prod Pract*, 1941: 200 - 213.
- [23] HEID J G, MCMAHON J J, NIELSON R F, et al. Study of the permeability of rocks to homogeneous fluids[J]. *Am Pet Inst Drill Prod Pract*, 1950: 230 - 244.
- [24] JONES S C. A rapid accurate unsteady-state klinkenberg permeameter[J]. *Society of Petroleum Engineering Journal*, 1972, **12**(5): 383 - 397.
- [25] JONES F O, OWENS W W. A laboratory study of low-permeability gas sands[J]. *J Pet Technol*, 1980: 1631 - 1640.
- [26] TANIKAWA W, SHIMAMOTO T. Comparison of Klinkenberg-corrected gas permeability and water permeability in sedimentary rocks[J]. *International Journal of Rock Mechanics & Mining Sciences*, 2009, **46**: 229 - 238.
- [27] 陈卫忠, 杨建平, 伍国军, 等. 低渗透介质渗透性试验研究[J]. *岩石力学与工程学报*, 2008, **27**(2): 236 - 243. (CHEN Wei-Zhong, YANG Jian-ping, WU Guo-jun, et al. Experimental study on permeability in low permeability media[J]. *Chinese Journal of Rock Mechanics and Engineering*, 2008, **27**(2): 236 - 243. (in Chinese))
- [28] American Petroleum Institute. Recommended practices for core analysis[M]. 2nd ed. Washington D C: American Petroleum Institute, 1998.
- [29] SAMPATH K, KEIGHIN C W. Factors affecting gas slippage in tight sandstones of Cretaceous Age in the Uinta Basin[J]. *JPT*, 1982, **11**: 2175 - 2220.
- [30] JONES S C. Using the inertial coefficient, β , to characterize heterogeneity in reservoir rock[C]// SPE Annual Technical Conference and Exhibition. Dallas, 1987: 27 - 30.
- [31] MOLDRUP P, POULSEN T G, SCHJØNNING P, et al. Gas permeability in undisturbed soils: Measurements and predictive models[J]. *Soil Sci*, 1998, **163**: 180 - 189.
- [32] BROOKS R H, COREY A T. Hydraulic properties of porous media[R]. Fort Collins: Colorado State University, 1964.
- [33] WEN Z J. Physical property of china's buffer material for high-level radioactive waste repositories[J]. *Chinese Journal of Rock Mechanics and Engineering*, 2006, **25**(4): 794 - 800.
- [34] PUSCH R, YONG R N. Microstructure of smectite clays and engineering performance[M]. London: Taylor & Francis, 2006.
- [35] WANG Q, CUI Y J, TANG A M. Hydraulic conductivity and microstructure changes of compacted bentonite/sand mixture during hydration[J]. *Engineering Geology*, 2013, **164**: 67 - 76.
- [36] WERSIN P, CURTI E, APPELO C A J. Modelling bentonite-water interactions at high solid/liquid ratios: Swelling and diffuse double layer effects[J]. *Applied Clay Science*, 2004, **26**: 249 - 257.
- [37] JACINTO A C, VILLAR M V, LEDESMA A. Influence of water density on the water-retention curve of expansive clays[J]. *Géotechnique*, 2012, **62**(8): 657 - 667.
- [38] CUI Y J, TANG A M, LOISEAU C, et al. Determining the unsaturated hydraulic conductivity of a compacted sand-bentonite mixture under constant-volume and free-swell conditions[J]. *Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C*, 2008, **33**: 462 - 471.
- [39] YE W M, CUI Y J, QIAN L X, et al. An experimental study of the water transfer through confined compacted GMZ bentonite[J]. *Engineering Geology*, 2009, **108**: 169 - 176.