

DOI: 10.11779/CJGE201806019

# 高放废物地质处置库缓冲/回填材料的气体渗透问题研究进展

叶为民<sup>1, 2</sup>, 刘樟荣<sup>1</sup>, 崔玉军<sup>3</sup>

(1. 同济大学地下建筑与工程系, 上海 200092; 2. 同济大学岩土及地下工程教育部重点实验室, 上海 200092; 3. 法国国立路桥大学, 法国 巴黎 77455)

**摘要:** 简要回顾和总结了国内外学者对处置库中的气体形成与渗透机制, 注气试验装置与试验方法, 以及气体渗透特性等方面的研究成果和最新进展。研究表明, 深地质处置库运营过程中会由于金属无氧腐蚀等产生以氢气为主的多组分气体, 气体在缓冲/回填材料中主要以对流-扩散渗流、黏性-毛细管两相流、局部膨胀通道渗流和沿宏观裂缝渗流等4种机制渗透。为此, 各国学者先后研发了恒体积渗透装置、 $K_0$ 渗透装置、等向应力渗透装置和三轴渗透装置等注气试验装置, 采用控制注气流量速率法或控制注气压力法开展了大量注气试验, 发现缓冲/回填材料的气体渗透率和特征压力等渗透特性均与其物理性质和边界条件等诸多因素有关。考虑到处置库实际运营工况的复杂性, 多场(热-水-化-力)多相(固-液-气)耦合条件下的缓冲/回填材料的气体渗透特性研究将是今后的一个重要工作方向。

**关键词:** 高放废物; 缓冲/回填材料; 气体渗透; 两相流; 优渗通道; 多场多相耦合

中图分类号: TU41 文献标识码: A 文章编号: 1000-4548(2018)06-1125-10

作者简介: 叶为民(1963-), 男, 安徽枞阳人, 教授, 博士生导师, 主要从事环境地质、非饱和土力学研究与教学工作。E-mail: ye\_tju@tongji.edu.cn。

## Advances in gas permeation problems of buffer/backfill materials in high-level radioactive waste geological repository

YE Wei-min<sup>1, 2</sup>, LIU Zhang-rong<sup>1</sup>, CUI Yu-jun<sup>3</sup>

(1. Department of Geotechnical Engineering, Tongji University, Shanghai 200092, China; 2. Key Laboratory of Geotechnical and

Underground Engineering of Ministry of Education, Tongji University, Shanghai 200092, China; 3. Ecole Nationale des Ponts et Chaussées, Paris 77455, France)

**Abstract:** A brief introduction is given to the findings and the latest advances in the mechanism of gas generation and migration, the testing equipments and methodologies as well as the properties of gas migration. The results show that the hydrogen based multi-component is generated during the operation of the repository, mainly resulting from the anaerobic corrosion of iron. There are four mechanisms for describing the gas migration in the buffer/backfill materials, including the advection-diffusion of gases dissolved in ground-water, visco-capillary two-phase flow, local dilated pathway flow and macroscopic fracture flow. Therefore, gas permeation devices for tests under the constant volume,  $K_0$  confined, isotropic stress and triaxial conditions are successively developed. Numerous gas injection tests are conducted using the gas flow-rate control or injection pressure control methods. It is shown that the gas permeability and characteristic pressures are influenced by many factors, including the physical properties and boundary conditions of the samples tested. Considering the complexity of the operation conditions for the buffer/backfill materials in a deep geological repository, investigations on the gas permeation under multi-field (thermo-hydro-chemical-mechanical) and multi-phase (solid-liquid-gas) coupled conditions should be a very important work to be conducted.

**Key words:** high-level radioactive waste; buffer/backfill material; gas permeation; two-phase flow; preferential pathway; multi-field and multi-phase coupling

## 0 引言

核技术的研究和应用必然产生各种核废物, 通常按其放射性水平划分为低放废物(LLW)、中放废物

基金项目: 国家重大科研仪器研制项目(41527801); 国家自然科学基金项目(41672271)

收稿日期: 2017-03-08

(ILW) 和高放废物 (HLW) 3 大类。目前中、低放射性废物已有较成熟的处置技术, 而高放废物含有毒性大、可发热、半衰期长的放射性核素, 一旦泄露将对人类及其生存环境构成极大的威胁, 如何对其进行安全处置仍然是一个富有挑战性的难题<sup>[1]</sup>。经过半个世纪的探索研究, 先后提出了高放废物的地质处置、海洋处置、冰川处置、太空处置等方案, 但目前大多数有核国家都倾向于采用由美国国家科学院<sup>[2]</sup>首先提出并被逐步完善的深地质处置方案, 即将高放废物进行预处理后埋置于距地表以下 500~1000 m 深的由天然屏障 (处置库围岩) 和工程屏障 (废物固化体、废物容器与缓冲/回填材料等) 构成的多重屏障稳定地质体中。其中, 缓冲/回填材料多采用膨润土及其与砂的混合物, 各国学者已针对其相关问题进行了大量研究<sup>[3]</sup>。高放废物深地质处置是一个涉及技术和社会领域的复杂多学科问题, 到目前为止, 仅芬兰政府于 2015 年率先批准开工建设深地质处置库<sup>[4]</sup>。

研究表明, 深地质处置库运营过程中, 废物容器及缓冲/回填材料会因地下水饱和而处于缺氧或无氧环境 (图 1), 从而由于金属的无氧腐蚀、水的辐解、微生物活动等, 导致废物容器与缓冲/回填材料接触面附近产生大量的 H<sub>2</sub>、CO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub> 和 H<sub>2</sub>S 等多种气体<sup>[5]</sup>。当气体生成速率逐渐增大, 以致于难以全部溶解于地下水中扩散时, 废物容器表面及近场气体将逐渐积聚并导致气压逐渐升高。在高气压的作用下, 缓冲/回填材料中可能形成裂缝, 导致工程屏障功能降低甚至完全丧失, 从而威胁到处置库的长期运行安全<sup>[6]</sup>。1983 年, Pusch 等<sup>[7]</sup>最早关注并研究了缓冲/回填材料 (高压实 Mx80 膨润土) 的气体渗透问题。此后三十余年中, 国外众多学者借助室内试样与地下原位等的注气试验及数值模拟等多种方法对该问题开展了大量的研究工作, 并就缓冲/回填材料的气体渗透特性取得了一些重要认识。

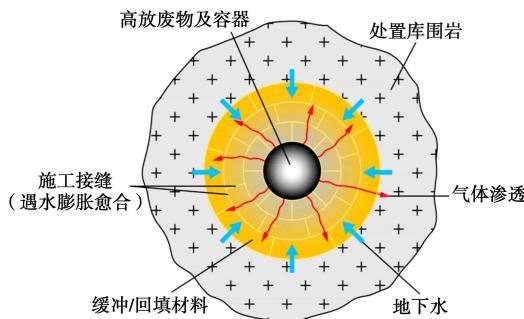


图 1 处置库中缓冲/回填材料的气体渗透问题

Fig. 1 Gas permeation problem of buffer/backfill materials in repository

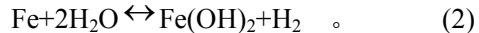
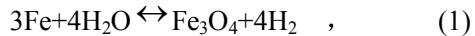
中国高放废物深地质处置研究工作始于 1985 年, 目前已初步确定甘肃北山作为中国首座处置库的预选

场址, 内蒙古高庙子膨润土为首选缓冲/回填材料<sup>[8]</sup>。近年来, 许多学者对高压实高庙子膨润土的核素吸附性能、微观结构、水力特性与力学性能等开展了大量研究, 但对其气体渗透特性方面的研究报道相对较少。本文拟对国内外相关研究成果和研究进展进行简要回顾与介绍, 以期为中国高放废物深地质处置库缓冲/回填材料的气体渗透问题研究提供参考与借鉴。

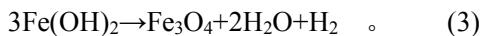
## 1 处置库中的气体形成机制及影响因素

众多学者普遍认为, 处置库中的主要气体成分是金属废物容器发生无氧腐蚀产生的 H<sub>2</sub>, 其它气体及其来源包括<sup>[5]</sup>: ①水等物质的辐解产生 H<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub> 等气体; ②水受热蒸发形成水蒸气; ③微生物活动 (有机物降解、硫酸盐还原等) 产生 CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>S 等气体; ④放射性废物的  $\alpha$ -衰变产生 H<sub>e</sub> 气; ⑤铀钍衰变产生 <sup>222</sup>Rn 或 <sup>220</sup>Rn 气体; ⑥活化产物裂变产生 <sup>129</sup>I, <sup>3</sup>H, <sup>14</sup>C, <sup>85</sup>Kr 等放射性同位素。

处置库建设与长期运营过程中, 围岩中的地下水将逐渐渗入, 使缓冲/回填材料逐渐达到饱和, 金属废物容器中的铁元素与地下水接触发生无氧腐蚀生成 H<sub>2</sub><sup>[9]</sup>:



低温无氧的地下水环境中, 式 (2) 右边的氢氧化亚铁 (Fe(OH)<sub>2</sub>) 处于亚稳定状态, 最终将在热动力作用下发生 Schikorr 反应转化为磁铁矿 (Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>)<sup>[10-11]</sup>:



因此, 上述 3 个反应可以归结为式 (1)。金属废物容器中所含的镍和水中溶解的氧气等可对上述反应起催化作用, 降低反应的活化能, 加快反应进程<sup>[12]</sup>。此外, 金属无氧腐蚀的速率还与 H<sub>2</sub> 的浓度 (或压力)、温度、PH 值、相对湿度、反应面积以及腐蚀产物的运移等诸多环境因素有关<sup>[9, 13-14]</sup>。Avis 等<sup>[15]</sup>指出, 金属容器并非从一开始便发生上述无氧腐蚀, 而是要经历干空气氧化、有氧非饱和腐蚀、无氧非饱和腐蚀以及无氧饱和腐蚀 4 个阶段。Senger 等<sup>[16]</sup>研究表明, 当相对湿度为 60% 时金属无氧腐蚀便开始, 当相对湿度达 90% 时, 腐蚀速率迅速提高。气体生成速率还与微生物代谢、缓冲/回填材料的类型及矿物含量等因素有关。

由此可见, 处置库中的气体形成是一个错综复杂的非线性多场耦合过程。早期的研究为了简化, 通常假设金属以恒定速率腐蚀, 且忽略了某些环境因素的影响, 结果导致得到的气体形成速率最大相差一个数量级<sup>[17]</sup>。早期普遍认为, 处置库中的气压将逐渐增大,

甚至高达 30 MPa, 最终将破坏缓冲/回填材料及围岩的结构完整性(产生微/宏观裂缝)和稳定性<sup>[18]</sup>。近年来, 越来越多的学者通过多场耦合全过程数值模拟研究处置库中的气体形成和运移问题, 结果表明处置库中的气压不足以使缓冲/回填材料及围岩产生裂缝, 此外由于缓冲/回填材料具有良好的宏观自愈性能, 即使气体突破导致土体内产生了裂缝, 也会由于气压的迅速降低而逐渐趋于自愈<sup>[11, 17, 19]</sup>。

## 2 气体在缓冲/回填材料中的渗透机制

废物容器表面附近生成和积聚的气体, 必须首先突破缓冲/回填材料构成的工程屏障才能向远场运移。许多学者已经意识到处置库中气压积聚的潜在危害, 采用不同方法对不同尺度的缓冲/回填材料中的气体渗透机制进行了试验或数值模拟研究。

实际上, 气体在缓冲/回填材料中的渗透过程十分复杂, Halayko<sup>[20]</sup>认为压实黏土中的气流受控于孔隙结构、黏土-水相互作用和气压梯度等因素。NAGRA<sup>[21-22]</sup>将气体在 Opalinus 黏土中的渗透现象解释为 4 种机制(图 2):①溶解气体的对流-扩散渗流;②黏性-毛细管两相流;③局部膨胀通道渗流;④沿宏观拉伸裂缝渗流。其中, 机制①总是存在的, 机制④只有当气体生成速率足够大时才可能发生, 机制②和机制③是近年来的研究热点, 也应当是今后的研究重点。

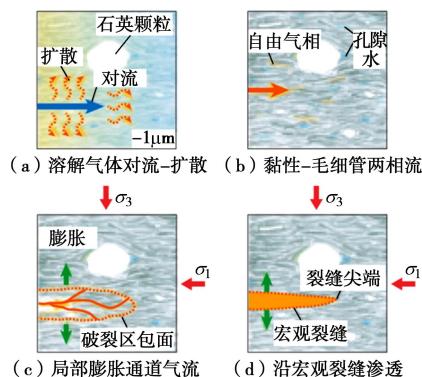


图 2 气体在缓冲/回填材料中的渗透机制<sup>[21-22]</sup>

Fig. 2 Gas permeation mechanism in buffer/backfill materials<sup>[21-22]</sup>

### 2.1 溶解气体的对流-扩散渗流

处置库建设与运营初始, 气体生成速率很低, 所有气体均可溶解在孔隙水中, 随地下水的运动发生对流-扩散渗透穿过缓冲/回填材料。这一过程可由三大基本定律来描述<sup>[21]</sup>: Darcy 定律(描述地下水的对流)、Fick 定律(描述浓度梯度作用下溶解气体在孔隙水中的扩散)和 Henry 定律(描述气体在孔隙水中的溶解度随气压的变化)。因此, 影响溶解气体渗流性质的主要因素有: Henry 系数, 扩散系数, 孔隙迂曲度, 气体可通过的孔隙度, 以及水的渗透系数等。研究表明,

溶解气体在压实膨润土等缓冲/回填材料孔隙水中的表观扩散系数(ADC)一般为  $10^{-10} \sim 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$  数量级大小, 且随干密度的增大而减小<sup>[23-24]</sup>, 随活性炭含量的增大而减小, 随含砂率的增大而增大<sup>[25]</sup>。Galle<sup>[26]</sup>基于该数量级根据 Fick 定律对溶解 H<sub>2</sub>的扩散流量速率进行了估算, 结果表明扩散机制显然不足以运移所有生成的 H<sub>2</sub>, 废物容器表面附近必然会积聚气相 H<sub>2</sub>。Bonin 等<sup>[9]</sup>建立了气泡形成时间的预测模型, 估算结果表明 500 m 深处以 3 μm/a 腐蚀的金属容器与黏土的接触面约 5 a 后即开始出现气泡。

### 2.2 黏性-毛细管两相流

如前所述, 孔隙水对气体的溶解度是有限的, 随着气体生成速率逐渐增大, 溶解气体的对流-扩散速率将比气体生成速率小得多, 仅靠对流-扩散机制远远不足以消散所有生成的气体。当气体浓度超过孔隙水的极限溶解度时, 废物容器表面及近场将逐渐形成并积聚气相气体, 并导致气压逐渐升高。当气压超过缓冲/回填材料的进气值(毛细管临界压力)时, 气体将进入缓冲/回填材料排挤孔隙水实现气-水两相共同运移<sup>[27-28]</sup>, 如图 3 所示。按照传统的两相流理论, 气体进入缓冲/回填材料后的流动性主要受控于<sup>[21]</sup>: ①缓冲/回填材料的固有渗透率  $K_{in}$ ; ②气(水)相对渗透率  $K_{rg}$  ( $K_{rw}$ ) 与饱和度的关系; ③毛细管压力  $P_c$  与饱和度的关系。两相流过程仍可用 Darcy 定律来描述。

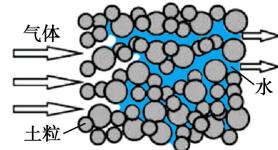


图 3 饱和缓冲/回填材料中的气-水两相流(据[27])

Fig. 3 Gas-water two-phase flow in saturated buffer/backfill materials (after Reference [27])

传统的两相流理论认为气-水渗流过程中孔隙形状和尺寸保持不变, 气-水界面沿固定通道推移, 无法解释气体突破及突破后饱和度几乎不变等试验现象。Horseman 等<sup>[29]</sup>认为, 高压实缓冲/回填材料的进气值很大, 气压增大到一定值(小于进气值)时便会沿最大的孔隙通道或不连续通道形成的优渗通道突破, 而不可能发生黏性-毛细管两相流现象。Harrington 等<sup>[30]</sup>进行的多组注气试验结果均表明, 气体突破前后试样的饱和度仅有微弱减小(小于 5%), 试样仍接近于饱和。也有的学者认为, 气体在非饱和或部分饱和的纯膨润土以及高含砂量砂-膨润土混合物中主要以两相流形式运移, 当饱和度大于 97% 时则以通道膨胀气流为主<sup>[31-32]</sup>。近年来, 一些学者将传统的两相流模型改进为水-力耦合模型, 考虑了流体压力及外部压力作用

引起的固相变形及渗流通道变化,计算结果与试验监测结果拟合较好<sup>[28, 33-35]</sup>。

### 2.3 局部膨胀通道渗流

当气压大于缓冲/回填材料的总应力(膨胀压力与孔隙水压力之和)时,气体将进入土体使局部孔隙膨胀(而不是排水),并互相连通形成许多不规则的气流通道(图4)。当某条气流通道与气体出口连通时即形成所谓的“优渗通道”,此时气体沿该优渗通道瞬间突破,同时气压迅速降低而使优渗通道逐渐趋于闭合。当气压再次积聚至大于总应力时,优势通道将再次开启,如此循环往复,形成间歇性的局部膨胀通道渗流。

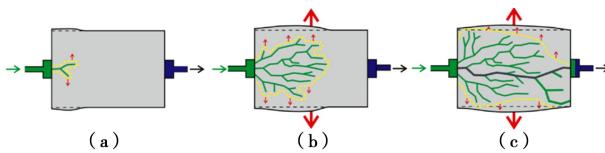


图4 优渗通道的形成过程<sup>[36]</sup>

Fig. 4 Formation process of preferential pathway<sup>[36]</sup>

局部膨胀通道气流是许多学者普遍认可并积极研究的气体渗流机制,已被大量室内试验或现场原位大比例注气试验所证实<sup>[29, 37-38]</sup>。从图4可以看出,缓冲/回填材料中的膨胀通道呈局部不规则分布,其数量、尺寸及空间分布极不稳定,随气压的变化而瞬间扩展或闭合,因此极大地影响着缓冲/回填材料的气体渗透性<sup>[39]</sup>。Delahaye等<sup>[40]</sup>、Alonso等<sup>[41]</sup>认为缓冲/回填材料水力特性的非均质性是形成优渗通道的必要条件。

近年来,英国地质调查局(BGS)的研究人员采用注射氧化氮或荧光染色水、注射放射性标记气体、Au与TiO<sub>2</sub>混合物纳米颗粒示踪技术<sup>[42]</sup>或直接通过玻璃窗口<sup>[43]</sup>等多种先进技术手段直接或间接地观察了膨胀通道的形成和扩展过程,进一步证实了局部膨胀通道气流是气体渗透的主要机制。日本学者Tanai等<sup>[44]</sup>采用X射线CT扫描技术对注气试验后的Kunigel V1膨润土试样进行扫描,结果表明气体沿优渗通道突破,而不是均匀地流过整个断面。

### 2.4 沿宏观裂缝渗流

若气体生成速率较大导致气压快速升高,以致于上述机制仍不足以疏散高压气体,导致气压大于缓冲/回填材料的抗拉强度与最小主应力之和时,气体将沿垂直于最小主应力方向、以剪切波速度扩展的宏观拉伸裂缝渗透。当气压小于最小主应力时,宏观拉伸裂缝将闭合。传统的流动理论难以描述这一过程,应当引入断裂力学和强度准则进行分析<sup>[28]</sup>。

## 3 注气试验装置与试验方法

为了研究气体在缓冲/回填材料中的渗透特性,许

多学者采用不同的试验装置和试验方法对不同尺度的试样进行了注气试验,一些国家或国际合作组织也对其开展了长期专项研究(如欧盟FORGE项目<sup>[45]</sup>、法国Lasgit试验<sup>[46]</sup>和瑞士GMT试验<sup>[47]</sup>等),均取得了十分丰硕的成果。这里就室内注气试验的装置和试验方法归纳总结如下。

### 3.1 注气试验装置

根据试样所受到的约束和变形特征,可将室内注气试验装置分为4大类:恒体积渗透装置、K<sub>0</sub>渗透装置、等向应力渗透装置和三轴渗透装置,其主要特征如表1所示。

表1 室内注气试验装置的类型和主要特征

Table 1 Types and main features of indoor gas injection test devices

装置类型	边界条件与变形特征	案例
恒体积	试样三向均受到约束,无体积变形	文献[30]
K <sub>0</sub>	试样径向受到约束,沿轴向变形	文献[30]
等向应力	三向应力相等,三向均可变形	文献[48]
三轴	分别控制轴压和围压,三向均可变形	文献[49]

Harrington等<sup>[30]</sup>分别用恒体积径向流(CVRF)装置(图5)和径向限制的K<sub>0</sub>装置(图6)对KBS-3标准预压实饱和Mx80膨润土分别进行了注He气试验。CVRF装置主要由6部分组成:两端闭合的厚壁圆筒形不锈钢压力室,1个注射压力系统,3个独立的反压系统(图5中1~3,每个包括4个出气端口),5个径向和轴向总应力传感器(PT1~PT3, PT5~PT6),1个孔隙水压力传感器(PT4),1个数据采集系统。该装置可将注气端口通过推杆送入试样的中心进行注气,用高精度注射泵控制注气压力和流量速率,可同

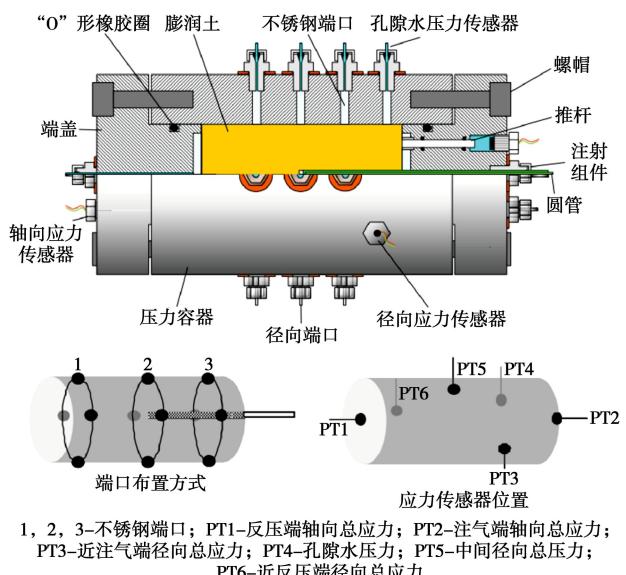


图5 恒体积径向流(CVRF)装置<sup>[30]</sup>

Fig. 5 Constant volume and radial flow (CVRF) apparatus<sup>[30]</sup>

时监测采集轴向总应力、孔隙水压力和不同位置的径向总应力。

径向限制的  $K_0$  装置(图6)仅允许试样通过两端活塞运动发生轴向应变,由于厚壁不锈钢套筒的限制而不能发生径向应变。该装置可监测采集注气试验过程中的轴向应力和孔隙水压力。

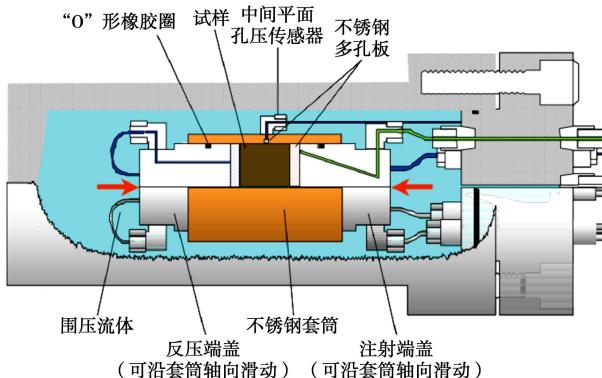


图6 径向限制的  $K_0$  装置<sup>[30]</sup>

Fig. 6 Radially-constrained  $K_0$  apparatus<sup>[30]</sup>

图7为Liu等<sup>[48]</sup>研制的一种等向应力渗透装置,包括套入Viton橡胶膜中的试样、围压腔、带围压数显表的油泵、气罐、气体缓冲罐及气压计等部件。该装置允许试样发生三向变形,可监测试验过程中的气体流量和气压的变化,从而计算气体渗透率和判别气体突破现象,但缺乏三向变形监测系统。

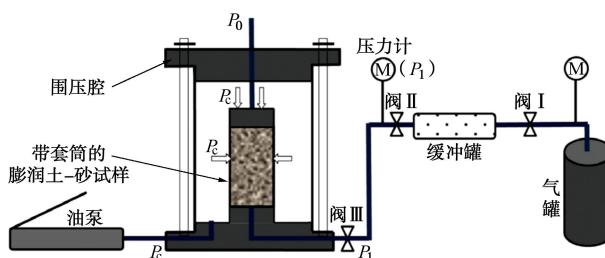


图7 等向应力气体渗透装置<sup>[48]</sup>

Fig. 7 Gas permeation device with isotropic stress<sup>[48]</sup>

瑞士洛桑联邦理工学院(EPFL)拥有一套特殊的三轴气体渗透装置<sup>[49]</sup>(图8)。该装置的主要特色在于具有非接触式的径向变形量测系统,主要包括5个组成部分:三轴仪,反压、围压和气压控制器,轴向加载系统和控制轴向位移的内部线性差动传感器(LVDT),径向位移激光量测系统,数据采集系统等,但缺乏温度控制系统。

利用上述几类注气试验装置,可以研究不同边界条件下缓冲/回填材料试样的气体渗透特性。然而,由于核衰变热、地下水化学成分、水(气)压、施工接缝等的影响,实际处置库中缓冲/回填材料的边界条件是随着热-水-化-力等复杂多场环境因素而变化的,且

高压实膨润土的渗透性极低,相关气体渗透试验装置有待进一步研发。

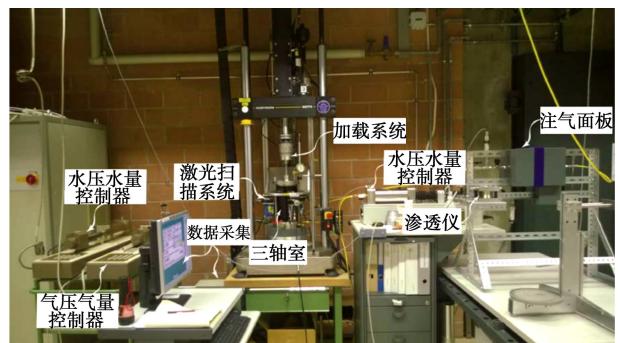


图8 EPFL三轴气体渗透装置<sup>[49]</sup>

Fig. 8 Triaxial gas permeation device in EPFL<sup>[49]</sup>

### 3.2 注气试验方法

按照注气气流的控制方法,可将前人已开展的注气试验分为控制注气流量速率法和控制注气压力法两大类,后者又可分为恒压法和逐级增压法。

控制注气流量速率法是通过高精度注射泵以恒定体积流量速率( $\mu\text{L}/\text{h}$ )向试样中注气,直至出现气体突破并稳定后才停止注气。Horseman等<sup>[29]</sup>采用该方法对多组KBS-3标准Mx80膨润土进行了不同流量速率的注气试验。

恒压法是使试验过程中的注气压力保持恒定,直至出现气体突破现象并稳定后停止注气<sup>[50]</sup>。逐级增压法则是控制试验过程中的注气压力每隔一定时间间隔升高一级压力,直至出现气体突破现象并稳定后停止注气。逐级增压法是最常用的注气试验方法,如Tanai等<sup>[51]</sup>分别对日本缓冲/回填材料饱和Kunigel V1膨润土和法国缓冲/回填材料Fo-Ca黏土进行了逐级增压注H<sub>2</sub>试验,Manca等<sup>[52]</sup>对Mx80膨润土-砂混合物进行了逐级增压注气试验。

## 4 气体渗透特性及其影响因素

相比于其它岩土材料,缓冲/回填材料具有高膨胀性、低渗透性、自愈合性等特殊性质,因此气体在这样特殊的多孔介质中的渗流过程也将表现出独有的特性。另一方面,气体与水在物理和力学性质上具有显著的差异,即使在同一种多孔介质中,气体与水的渗流规律也有很大区别。在大多数缓冲/回填材料注气试验中,主要监测试验过程中的气体流量和气体压力变化规律,用以分析气体渗透率和力学响应等渗透特性。

### 4.1 气体渗透率及其影响因素

由于缓冲/回填材料往往处于非饱和状态,气体在缓冲/回填材料的渗流一般用有效渗透率或相对渗透

率(本文统称气体渗透率)来表征,用以判断其气密性是否满足工程安全需求。多孔介质多相流中气相的渗透率称为气体有效渗透率,量纲为 $L^2$ ;气体有效渗透率与单一气相饱和时的渗透率(即用气相测得的固有渗透率,量纲为 $L^2$ )的比值称为气体相对渗透率,量纲为1。研究<sup>[48, 51, 53]</sup>表明,用气体测得的膨润土固有渗透率比用水测得的高若干个数量级,因为水会使膨润土颗粒膨胀或形成厚层结合水,导致集合体间孔隙尺寸显著减小,使水的有效渗流通道变小或减少。因此一般采用气体来测定缓冲/回填材料的固有渗透率。

稳态条件下的气体渗透率可根据 Darcy 定律计算,但由于气体渗透率与诸多因素有关,不同缓冲/回填材料在不同条件下的气体渗透率相差很大。影响缓冲/回填材料气体渗透率的主要因素包括:物理性质(孔隙度、饱和度、干密度、含水率、含砂率等)、边界条件(围压、温度、湿度等)和 Klinkenberg 效应等。

许多研究表明,气体渗透率随饱和度或干密度的增大而降低。Gallé 等<sup>[54]</sup>研究了干密度 $1.6\sim1.9\text{ g/cm}^3$ 、饱和度 $70\%\sim100\%$ 的法国 Fo-Ca 黏土的气体有效渗透率( $10^{-15}\sim10^{-21}\text{ m}^2$ ),结果表明干密度一定时,饱和度从 70%增大到 100%时,气体有效渗透率减小 3 个数量级;饱和度一定时,干密度每增大 0.1,气体有效渗透率则减小 1 个数量级(图 9)。Tanai 等<sup>[51]</sup>对日本 Kunigel V1 膨润土研究表明,当饱和度增大至 72%时,气体相对渗透率趋近于 0。

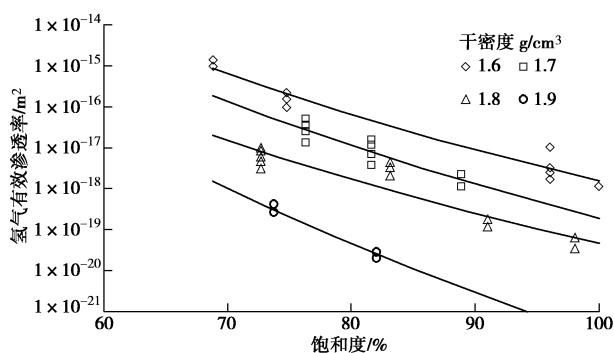


图 9 Fo-Ca 黏土  $H_2$  有效渗透率随干密度和饱和度的变化<sup>[54]</sup>

Fig. 9 Evolution of Fo-Ca clay  $H_2$  gas permeability with dry density and saturation degree of water<sup>[54]</sup>

Liu 等<sup>[55]</sup>采用三轴渗透装置对 Mx80 膨润土-砂(7:3)混合物研究表明,孔隙度与饱和度是影响气体有效渗透率的主要因素,且均为负相关关系。气体有效渗透率还与围压大小有关,当围压从 1 MPa 增至 7 MPa 时,相对湿度 98%条件下试样的气体有效渗透率从  $10^{-16}\text{ m}^2$  降至  $10^{-20}\text{ m}^2$ 。高玉峰<sup>[56]</sup>研究了气压围压

比对气体渗透率的影响,刘龙波等<sup>[57]</sup>、汪龙等<sup>[58]</sup>研究了干密度(孔隙度)、含水率对膨润土-砂混合物气体渗透系数的影响,后者发现混合物的气体渗透系数随干密度和含水率的增加而呈指数形式降低。

膨润土-砂混合物中的含砂率也是影响其气体渗透率的重要因素。纯膨润土中混入砂后孔隙度增大,导致其气体渗透率随之增大。汪龙等<sup>[58]</sup>研究认为,干密度  $1.5\text{ g/cm}^3$ 、含水率 12.5%的高庙子膨润土-砂混合物的渗气系数(量纲  $LT^{-1}$ )随含砂率的增大而呈指数增长,当含砂率小 30%时,含砂率影响较小。

此外,气体渗透率还与温度、湿度<sup>[54]</sup>、体积含气率(或气隙比)及滑脱效应(或称 Klinkenberg 效应)有关。Villar 等<sup>[31]</sup>在研究西班牙 FEBEX 膨润土的渗透特性时,发现气体渗透率与气隙比  $e(1-S_r)$  存在良好的幂函数关系。秦冰等<sup>[59]</sup>发现当气体渗透率小于  $10^{-14}\text{ m}^2$  时,压实膨润土中滑脱效应的影响较为显著,气体渗透率会随气压的增大而降低。

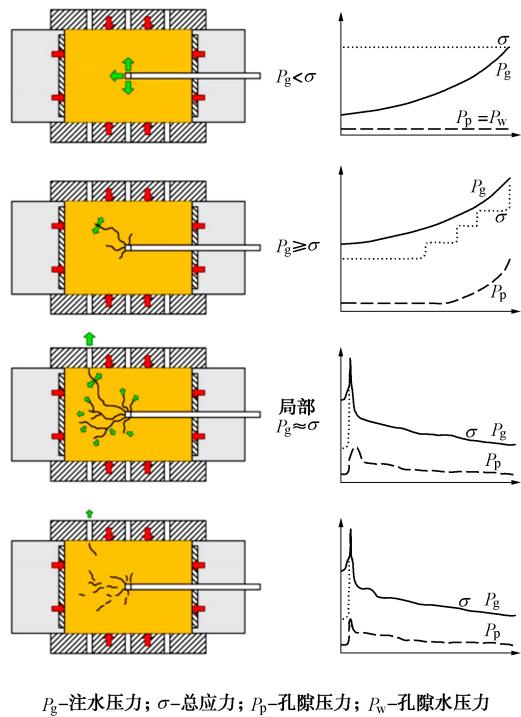
目前,有关孔隙水化学对气体渗透率影响的研究相对较少。高玉峰<sup>[56]</sup>研究了北山地下水浸泡作用对高庙子膨润土气体渗透特性的影响,发现浸泡处理后的试样气体渗透率略有增大,但其在不同气压围压比下的变化规律与未浸泡处理的试样基本一致。

#### 4.2 注气过程中的特征压力及其影响因素

以 Mx80 膨润土恒体积恒流量速率注气试验为例,从开始注气到停止注气的整个过程中,存在 3 个重要事件<sup>[37]</sup>(图 10):①当气压超过总应力时,气体开始进入膨润土并逐渐形成局部不规则的膨胀通道;②当某条通道与出气口相交时,气体突破膨润土,气压达到峰值;③停止注气后,气压逐渐回落至总应力大小,局部膨胀通道逐渐坍塌闭合。

由图 10 可见,注气试验过程中存在两个重要的临界特征压力,即进气压力(进气值)和突破压力(穿透压力),后者是局部膨胀通道气流机制的有力证据之一。不同学者对两者的定义略有差异,但一般将前者定义为气体开始进入土体时的气压大小,将后者定义为试样出气端气体流量速率突然迅速增大时对应的注气压力<sup>[37]</sup>。进气压力总是小于突破压力,饱和度越大两者差值越小,有时甚至难以区分<sup>[26]</sup>。大量研究表明,出现气体突破现象的条件是注气压力大于试样的总应力(膨胀压力与孔隙水压力之和)<sup>[30]</sup>,因此突破压力随膨胀压力和孔隙水压力(反压)的增大而增大。

影响进气压力和突破压力的主要因素有:物理性质(饱和度、干密度等)、化学性质(水中含盐量等)、边界条件(围压、反压、注气方式、出气口位置与数量等)和尺度效应(试样尺寸、试验持续时间、每级压力持续时间等)等。

图 10 M<sub>x</sub>80 膨润土恒体积注气试验示意图<sup>[37]</sup>Fig. 10 Schematic representation of gas injection in M<sub>x</sub>80 bentonite under constant volume boundary<sup>[37]</sup>

Graham 等<sup>[27]</sup>通过试验得出突破压力随干密度的增大而增大, 而当饱和度小于 93% 时, 饱和度对突破压力影响不大, 大于 93% 时突破压力随饱和度的增大而迅速增大。突破压力的大小还与试样孔隙中液相的化学性质有关。Graham 等<sup>[27]</sup>采用无极性石蜡比用水制备的膨润土试样的突破压力小得多, 因为前者阻碍了扩散双电层中形成结合水。Manca 等<sup>[52]</sup>研究认为合成水中的阳离子使膨润土-砂混合物的膨胀压力大幅减小, 从而导致突破压力随之显著减小。一些学者在注气试验中发现, 再次突破时的气压与首次突破时的气压几乎相等, 因为再饱和过程中膨胀通道趋于闭合<sup>[51]</sup>, 这也表明气体突破对缓冲/回填材料的气密性影响不大。气体突破前需要经历气压积聚的过程, Hume<sup>[50]</sup>认为气体压力越大, 突破时间越短。气体突破压力还与出气口位置和数量、试样尺寸、试验持续时间及每级压力持续时间等因素有关<sup>[30, 39, 54]</sup>。

除了注气试验以外, 近年来越来越多的学者采用数值模拟手段来研究多场耦合条件下缓冲/回填材料的气体渗透特性。例如, Alonso 等<sup>[41]</sup>采用 CODE\_BRIGHT 程序研究了热-水-力(THM)耦合条件下的气体优渗通道形成过程, 发现初始非均质性是形成优渗通道的必要条件; Masum 等<sup>[19]</sup>采用 COMPASS 程序模拟了热-水-化-力 (THCM) 耦合多组分气体在饱和 Mx80 膨润土中的渗透特性, 发现多组分扩散气流主要受控于气体扩散系数矩阵中的对角线元素, 因此低

浓度多组分气体扩散可简化为二元扩散; Justinavicius 等<sup>[60]</sup>采用 TOUGH2 程序比较了温度和孔隙迂曲度对气体渗透的影响, 结果表明气体渗透主要与孔隙迂曲度模型有关, 而温度变化影响较小。

## 5 结论与建议

缓冲/回填材料的气体渗透问题是影响高放废物地质处置库长期安全运行的重要因素。自 20 世纪 80 年代以来, 国外许多学者对处置库中的气体形成与渗透机制、室内注气试验装置与试验方法以及缓冲/回填材料的气体渗透特性等方面开展了大量研究, 对缓冲/回填材料的气体渗透问题已经形成了一些重要认识:

(1) 深地质处置库运营过程中, 由于金属的无氧腐蚀、水的辐解、微生物活动等, 导致废物容器与缓冲/回填材料接触面附近产生大量的  $H_2$ 、 $CO_2$ 、 $CH_4$  和  $H_2S$  等多种气体。

(2) 气体在缓冲/回填材料中存在 4 种渗透机制, 即溶解气体的对流-扩散渗流、黏性-毛细管两相流、局部膨胀通道渗流和沿宏观裂缝渗流。

(3) 室内注气试验装置分为恒体积渗透装置、 $K_0$  渗透装置、等向应力渗透装置和三轴渗透装置等 4 大类, 注气试验方法可分为控制注气流量速率法和控制注气压力法两大类。

(4) 缓冲/回填材料的气体渗透率和特征压力均与其物理性质和边界条件等诸多因素有关。

高压实高庙子膨润土(GMZ)的气体渗透问题研究相对较少。能够综合反映处置库中缓冲/回填材料实际工况的试验装置的研制, 借助先进的监测仪器和现代数学、力学工具, 同时结合大型三维精细化数值模拟, 多场(热-水-化-力)多相(固-液-气)耦合条件下高压实膨润土的气体渗透特性的研究等, 均是处置库的长期安全性能评价研究中的重点工作。

## 参考文献:

- [1] 王 驹. 高水平放射性废物地质处置: 关键科学问题和相关进展[J]. 科技导报, 2016, 34(15): 51–55. (WANG Ju. Geological disposal of high level radioactive waste: Key scientific issues and progress in China[J]. Science & Technology Review, 2016, 34(15): 51–55. (In Chinese))
- [2] National Research Council (US) Committee on Waste Disposal. The disposal of radioactive Waste on Land[M]. Washington D C: National Academies Press (US), 1957.
- [3] 崔玉军, 陈 宝. 高放核废物地质处置中工程屏障研究新进展[J]. 岩石力学与工程学报, 2006, 25(4): 842–847. (CUI Yu-jun, CHEN Bao. Recent advances in research on

- engineered barrier for geological disposal of high-level radioactive nuclear waste[J]. Chinese Journal of Rock Mechanics and Engineering, 2006, **25**(4): 842 – 847. (In Chinese))
- [4] GARRICK B J, ABKOWITZ M D, ARNOLD W H, et al. Survey of national programs for managing high-level radioactive waste and spent nuclear fuel: a report to Congress and the Secretary of Energy[R]. Arlington: US Nuclear Waste Technical Review Board, 2016.
- [5] ORTIZ L, VOLCKAERT G, MALLANTS D. Gas generation and migration in Boom Clay, a potential host rock formation for nuclear waste storage[J]. Engineering Geology, 2002, **64**(2): 287 – 296.
- [6] LIU J F, DAVY C A, TALANDIER J, et al. Effect of gas pressure on the sealing efficiency of compacted bentonite-sand plugs[J]. Journal of Contaminant Hydrology, 2014, **170**: 10 – 27.
- [7] PUSCH R, FORSBERG T. Gas migration through bentonite clay[R]. Luleå: University of Luleå, 1983.
- [8] WANG J, SU R, CHEN W M, et al. Deep geological disposal of high-level radioactive wastes in China[J]. Chinese Journal of Rock Mechanics and Engineering, 2006, **25**(4): 649 – 658.
- [9] BONIN B, COLIN M, DUTFOY A. Pressure building during the early stages of gas production in a radioactive waste repository[J]. Journal of Nuclear Materials, 2000, **281**(1): 1 – 14.
- [10] REARDON E J. Anaerobic corrosion of granular iron measurement and interpretation of hydrogen evolution rates[J]. Environmental Science & Technology, 1995, **29**(12): 2936 – 2945.
- [11] XU T F, SENGER R, FINSTERLE S. Corrosion-induced gas generation in a nuclear waste repository: Reactive geochemistry and multiphase flow effects[J]. Applied Geochemistry, 2008, **23**(12): 3423 – 3433.
- [12] JOSHI P S, VENKATESWARAN G, VENKATESWARLU K S, et al. Stimulated decomposition of  $\text{Fe(OH)}_2$  in the presence of AVT chemicals and metallic surfaces—relevance to low-temperature feedwater line corrosion[J]. Corrosion, 1993, **49**(4): 300 – 309.
- [13] SCHÜTZ M K, SCHLEGEL M L, LIBERT M, et al. Impact of iron-reducing bacteria on the corrosion rate of carbon steel under simulated geological disposal conditions[J]. Environmental Science & Technology, 2015, **49**(12): 7483 – 7490.
- [14] JOHNSON L, KING F. The effect of the evolution of environmental conditions on the corrosion evolutionary path in a repository for spent fuel and high-level waste in Opalinus Clay[J]. Journal of Nuclear Materials, 2008, **379**: 9 – 15.
- [15] AVIS J, SUCKLING P, CALDER N, et al. T2GGM: a coupled gas generation model for deep geologic disposal of radioactive waste[J]. Nuclear Technology, 2014, **187**(2): 175 – 187.
- [16] SENGER R, MARSCHALL P, FINSTERLE S. Investigation of two phase flow phenomena associated with corrosion in an SF/HLW repository in Opalinus Clay, Switzerland[J]. Physics and Chemistry of the Earth, 2008, **33**(S1): 317 – 326.
- [17] VARDON P J, NICHOLSON D, CHEN Q, et al. Simulation of repository gas migration in a bentonite buffer[J]. Engineering & Computational Mechanics, 2014, **167**(1): 13 – 22.
- [18] NERETNIEKS I. Some aspects of the use of iron canisters in deep lying repositories for nuclear waste (Technical report TR 85-35.)[R]. Baden: NAGRA, 1985.
- [19] MASUM S A, VARDON P J, THOMAS H R, et al. Multicomponent gas flow through compacted clay buffer in a higher activity radioactive waste geological disposal facility[J]. Mineralogical Magazine, 2012, **76**(8): 3337 – 3344.
- [20] HALAYKO K S G. Gas flow in compacted clays[D]. Manitoba: University of Manitoba, 1998.
- [21] MARSCHALL P, HORSEMAN S, GIMMI T. Characterisation of gas transport properties of the Opalinus Clay, a potential host rock formation for radioactive waste disposal[J]. Oil & Gas Science and Technology-Rev. IFP, 2005, **60**(1): 121 – 139.
- [22] NAGRA. Effects of post-disposal gas generation in a repository for low-and intermediate-level waste sited in the opalinus clay of northern switzerland[R]. Baden: NAGRA, 2008.
- [23] JACOPS E, VOLCKAERT G, MAES N, et al. Determination of gas diffusion coefficients in saturated porous media: He and  $\text{CH}_4$  diffusion in Boom Clay[J]. Applied Clay Science, 2013, **83-84**(10): 217 – 223.
- [24] SATO S, OTSUKA T, KURODA Y, et al. Diffusion of helium in water-saturated, compacted sodium montmorillonite[J]. Journal of Nuclear Science and Technology, 2001, **38**(7): 577 – 580.
- [25] YANG T Z, PENG X J, LIU Y N, et al. A simulation study on

- the mitigation capability of bentonite backfill to gaseous radionuclides[J]. Chinese Journal of Chemical Physics, 2003, **16**(5): 379 – 384.
- [26] GALLÉ C. Gas breakthrough pressure in compacted Fo-Ca clay and interfacial gas overpressure in waste disposal context[J]. Applied Clay Science, 2000, **17**(1): 85 – 97.
- [27] GRAHAM J, HALAYKO K G, HUME H, et al. A capillary-advection model for gas break-through in clays[J]. Engineering Geology, 2002, **64**: 273 – 286.
- [28] YE W M, XU L, CHEN B, et al. An approach based on two-phase flow phenomenon for modeling gas migration in saturated compacted bentonite[J]. Engineering Geology, 2014, **169**(2): 124 – 132.
- [29] HORSEMAN S T, HARRINGTON J F, SELLIN P. Gas migration in clay barriers[J]. Engineering Geology, 1999, **54**: 139 – 149.
- [30] HARRINGTON J F, HORSEMAN S T. Gas migration in KBS-3 buffer bentonite: sensitivity of test parameters to experimental boundary conditions (SKB Technical Report, TR-03-02) [R]. Stockholm: SKB, 2003.
- [31] VILLAR M V, GUTIÉRREZ-RODRIGO V, MARTÍN P L, et al. Gas transport in bentonite[R]. Madrid: Departamento de Medio Ambiente, 2013.
- [32] SELLIN P, LEUPIN O X. The use of clay as an engineered barrier in radioactive-waste management - a review[J]. Clays & Clay Minerals, 2013, **61**(6): 477 – 498.
- [33] OLIVELLA S, ALONSO E E. Gas flow through clay barriers[J]. Géotechnique, 2008, **58**(3): 157 – 176.
- [34] XU W J, SHAO H, HESSER J, et al. Coupled multiphase flow and elasto-plastic modeling of in-situ gas injection experiments in saturated claystone (mont terri rock laboratory)[J]. Engineering Geology, 2013, **157**(8): 55 – 68.
- [35] SIEMENS G, BLATZ J A, RUTH D. A capillary-tube model for two-phase transient flow through bentonite materials[J]. Canadian Geotechnical Journal, 2007, **44**(12): 1446 – 1461.
- [36] CUSS R, HARRINGTON J, GIOT R, et al. Experimental observations of mechanical dilation at the onset of gas flow in Callovo-Oxfordian claystone[J]. Geological Society London Special Publications, 2014, **400**(1): 507 – 519.
- [37] GRAHAM C C, HARRINGTON J F, SELLIN P. Gas migration in pre-compacted bentonite under elevated pore-water pressure conditions[J]. Applied Clay Science, 2016: 132 – 133, 353 – 365.
- [38] CUSS R J, HARRINGTON J F, NOY D J, et al. Evidence of localised gas propagation pathways in a field-scale bentonite engineered barrier system: results from three gas injection tests in the large scale gas injection test (Lasgit)[J]. Applied Clay Science, 2014, **102**: 81 – 92.
- [39] GRAHAM C C, HARRINGTON J F, CUSS R J, et al. Gas migration experiments in bentonite: implications for numerical modelling[J]. Mineralogical Magazine, 2012, **76**(8): 3279 – 3292.
- [40] DELAHAYE C H, ALONSO E E. Soil heterogeneity and preferential paths for gas migration[J]. Engineering Geology, 2002, **64**(2): 251 – 271.
- [41] ALONSO E E, OLIVELLA S, ARNEDO D. Mechanisms of gas transport in clay barriers[J]. Journal of Iberian Geology, 2006, **32**(2): 175 – 196.
- [42] HARRINGTON J F, MIŁODOWSKI A E, GRAHAM C C, et al. Evidence for gas-induced pathways in clay using a nanoparticle injection technique[J]. Mineralogical Magazine, 2012, **76**(8): 3327 – 3336.
- [43] WISEALL A C, CUSS R J, GRAHAM C C, et al. The visualization of flow paths in experimental studies of clay-rich materials[J]. Mineralogical Magazine, 2015, **79**(6): 1335 – 1342.
- [44] TANAI K, YUI M. A study on gas migration behavior in buffer material using X-ray CT method[J]. Mrs Online Proceeding Library, 2006, **932**: 127 – 134.
- [45] BOND A E, THATCHER K E, NORRIS S. Multi-scale gas transport modelling for the EC FORGE project[J]. Mineralogical Magazine, 2015, **79**(6): 1251 – 1263.
- [46] CUSS R J, HARRINGTON J F, NOY D J, et al. Final report of FORGE WP3.1.1: The large scale gas injection test (Lasgit) performed at the Äspö Hard Rock Laboratory[R]. Nottingham: British Geological Survey, 2012.
- [47] FUJIWARA A, OKAMOTO S, TSUBOYA T, et al. Gas migration test at the grimsel test site[J]. Chinese Journal of Rock Mechanics & Engineering, 2006, **25**(4): 781 – 787.
- [48] LIU J F, SKOCZYLAS F, LIU J. Experimental research on water retention and gas permeability of compacted bentonite/sand mixtures[J]. Soils and Foundations, 2014, **54**(5): 1027 – 1038.
- [49] MANCA D. Hydro-chemo-mechanical characterisation of sand/bentonite mixtures, with a focus on the water and gas transport properties[D]. Lausanne: École polytechnique fédérale de Lausanne, 2015.
- [50] HUME H B. Gas breakthrough in compacted Avonlea

- bentonite[D]. Winnipeg: University of Manitoba, 1999.
- [51] TANAI K, KANO T, GALLÉC. Experimental study of gas permeabilities and breakthrough pressures in clays[J]. Mrs Online Proceeding Library, 1996, **465**: 995 - 1002.
- [52] MANCA D, MONFARED M, FERRARI A, et al. Gas injection tests on a sand bentonite mixture: investigation on the effect of pore water chemistry[C]// FORGE Symposium, Luxembourg, 2013.
- [53] LLORET A, VILLAR M V. Advances on the knowledge of the thermo-hydro-mechanical behaviour of heavily compacted “FEBEX” bentonite[J]. Physics & Chemistry of the Earth, 2007, **32**: 701 - 715.
- [54] GALLÉ C, TANAI K. Evaluation of gas transport properties of backfill materials for waste disposal: H<sub>2</sub> migration experiments in compacted Fo-Ca Clay[J]. Clays & Clay Minerals, 1998, **46**(5): 498 - 508.
- [55] LIU J F, SKOCZYLAS F, TALANDIER J. Gas permeability of a compacted bentonite-sand mixture: coupled effects of water content, dry density, and confining pressure[J]. Canadian Geotechnical Journal, 2015, **52**(8): 1159 - 1167.
- [56] 高玉峰. 北山地下水对膨润土力学和渗气特性影响研究[D]. 北京: 核工业北京地质研究院, 2016. (GAO Yu-feng. Research on the impact on mechanical property and gas permeability of bentonite by Beishan groundwater[D]. Beijing:
- Beijing Research Institute of Uranium Geology, 2016. (in Chinese))
- [57] 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 - 29, 25. (LIU Long-bo, WANG Xu-hui, ZHANG Zi-lu, et al. Study on gas permeability of the unsaturated bentonites[J]. Hydrogeology & Engineering Geology, 2002(6): 26 - 29, 25. (in Chinese))
- [58] 汪 龙, 方祥位, 申春妮, 等. 膨润土-砂混合型缓冲/回填材料渗气规律试验研究[J]. 岩石力学与工程学报, 2015, **34**(增刊 1): 3381 - 3388. (WANG Long, FANG Xiang-wei, SHEN Chun-ni, et al. Experimental study of gas permeability of bentonite-sand mixtures as buffer/backfilling materials[J]. Chinese Journal of Rock Mechanics and Engineering, 2015, **34**(S1): 3381 - 3388. (in Chinese))
- [59] 秦 冰, 陆 颀, 张发忠, 等. 考虑 Klinkenberg 效应的压实膨润土渗气特性研究[J]. 岩土工程学报, 2016, **38**(12): 2194 - 2202. (QIN Bing, LU Yang, ZHANG Fa-zhong, et al. Study on gas permeability of compacted bentonite with consideration of the Klinkenberg effect[J]. Chinese Journal of Geotechnical Engineering, 2016, **38**(12): 2194 - 2202. (in Chinese))
- [60] JUSTINAVICIUS D, POSKAS P. Temperature and tortuosity effect on gas migration in a high-level waste disposal tunnel[J]. Mineralogical Magazine, 2015, **79**(6): 1317 - 1325.

## 本期广告索引

- 封 2 北京筑信达咨询有限公司  
 封 3 北京理正软件股份有限公司  
 封 4 上海分元土木工程有限公司