

DOI: 10.11779/CJGE202008004

# 缓冲/回填材料——膨润土颗粒及其混合物研究进展

刘樟荣<sup>1, 3</sup>, 崔玉军<sup>1, 3</sup>, 叶为民<sup>\*1, 2</sup>, 王 琮<sup>1, 4</sup>, 张 召<sup>1</sup>, 陈永贵<sup>1, 2</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; 4. 同济大学高等研究院, 上海 200092)

**摘 要:** 膨润土颗粒是一种用于填充高放废物地质处置库中各种施工接缝和空隙的缓冲/回填材料。从膨润土颗粒的制备方法、填充技术与堆积性质、热传导特性、水力特性、结构演化规律及力学特性等 6 个方面, 全面回顾和总结了近年来对膨润土颗粒的研究成果与最新进展, 并分别指出了各方面值得进一步深入研究的几个课题。研究表明, 膨润土颗粒可由多种方法制备, 也可采用多种技术填充到处置库中, 其堆积干密度和均匀性与充填技术、级配、堆积方式等因素有关, 其热传导系数与干密度、含水率和温度等因素有关, 其水力-力学特性与级配、干密度及温度等因素有关。通水水化或降低吸力过程中, 颗粒混合物由初始松散结构逐渐转变为胶结融合结构, 及至水化饱和后基本达到宏观上的均一化结构, 但微观层次的均一化过程仍将持续漫长的时间。考虑到处置库实际运营工况的复杂性, 科学高效的颗粒混合物填充技术、多场(热-水-化-力)耦合条件下的颗粒混合物水力-力学特性及结构演化规律是今后值得深入探索的研究方向。

**关键词:** 深地质处置; 缓冲/回填材料; 膨润土颗粒; 颗粒混合物

中图分类号: TU41

文献标识码: A

文章编号: 1000-4548(2020)08-1401-10

**作者简介:** 刘樟荣(1990—), 男, 江西赣州人, 博士, 博士后, 主要从事非饱和土力学与工程地质方面的研究工作。

E-mail: liuzr@tongji.edu.cn。

## Advances in researches on buffer/backfilling materials—bentonite pellets and pellet mixtures

LIU Zhang-rong<sup>1, 3</sup>, CUI Yu-jun<sup>1, 3</sup>, YE Wei-min<sup>\*1, 2</sup>, WANG Qiong<sup>1, 4</sup>, ZHANG Zhao<sup>1</sup>, CHEN Yong-gui<sup>1, 2</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. Laboratoire Navier, Ecole des Ponts

ParisTech, Paris 77455, France; 4. Institute for Advanced Study, Tongji University, Shanghai 200092, China)

**Abstract:** The bentonite pellet is considered as an alternative buffer/backfilling material to fill technological voids and empty space in high-level radioactive waste (HLW) repository. The previous studies on the bentonite pellets are carefully reviewed and summarized, including their manufacturing methods, emplacement techniques, thermal conductivity, hydraulic behavior, structural change and mechanical behavior. Correspondingly, the research subjects worth further investigation are put forward. The results in the literatures indicate that the pellets can be manufactured and emplaced using several techniques, which together with size gradation and packing protocol can influence the packing dry density and homogeneity. For the pellet mixtures, the thermal conductivity is mainly governed by dry density, water content and temperature, and the hydro-mechanical behavior is related to size gradation, dry density and temperature. Upon liquid or suction controlled hydration, the initial loose-structured pellet mixtures will gradually transfer to the cemented state and finally present a homogeneous appearance at saturation. However, much longer duration is required before getting a completely homogeneous state. Considering the complexity of the operation conditions in a HLW repository, the improvements on emplacement techniques of the pellets and the investigations on the hydro-mechanical behavior and structural change under the coupled thermo-hydro-chemo-mechanical conditions should be further conducted.

**Key words:** geological disposal; buffer/backfilling material; bentonite pellet; pellet mixture

## 0 引 言

在许多国家的高放废物(HLW)深地质处置库概

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, 41807237); 上海市浦江人才计划项目(18PJ1410200)

收稿日期: 2019-09-16

\*通信作者(E-mail: ye\_tju@tongji.edu.cn)

念中,高压实膨润土块体等缓冲/回填材料被用来填充处置容器与围岩之间的空隙,构成一道重要的工程屏障,以延缓地下水入渗、阻滞核素迁移、传递核素衰变热和维护处置库结构稳定性<sup>[1]</sup>。然而,以高压实膨润土块体砌筑的工程屏障将不可避免地存在各种各样的施工接缝<sup>[2]</sup>,包括块体与处置容器之间、块体与块体之间及块体与围岩之间的缝隙。这些施工接缝将成为地下水入渗和核素外泄的优势通道,大大降低了工程屏障的缓冲性能,直接威胁到处置库的长期安全运营<sup>[3]</sup>。为此,Saló 等<sup>[4]</sup>首次提出采用高密度膨润土颗粒及其与膨润土粉末的混合物来填充施工接缝(图 1(a)),或者取代膨润土块体作为主体缓冲/回填材料(图 1(b))。

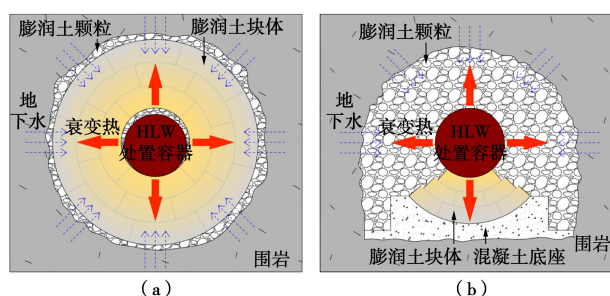


图 1 膨润土颗粒在高放废物处置库中的应用

Fig. 1 The application of bentonite pellets in HLW repository

膨润土颗粒是一种由天然膨润土粉末制成的高干密度(通常大于  $1.80 \text{ g/cm}^3$ )颗粒状土材料。由于其具有高膨胀性、低渗透性和良好的核素吸附性能,又便于机械化制造、袋装化运输和自动化填充,且能够有效填充处置库中的各种施工接缝或空隙,膨润土颗粒已被瑞典 SKB、芬兰 Posiva、加拿大 NWMO、瑞士 NAGRA、法国 ANDRA、比利时 SCK/CEN 及其它国家(如日本、中国、印度、韩国和乌克兰等)的处置库概念选为候选缓冲/回填材料<sup>[5]</sup>。许多学者也针对膨润土颗粒及其混合物的堆积性质、热传导性质、水力-力学特性和结构演化规律开展了大量研究工作<sup>[6]</sup>。遗憾的是,这些研究成果大多零散地分布在 SKB、Posiva 和 NAGRA 等机构的研究报告中,缺乏必要的整理与综述。

本文拟对膨润土颗粒的制备方法、填充技术与堆积性质、热传导特性、水力特性、结构演化规律及力学特性等 6 个方面的研究成果和最新进展进行简要回顾与介绍,并分别指出各方面值得进一步深入研究的几个课题,以期对膨润土颗粒相关课题研究和工程实践提供参考与借鉴。

## 1 颗粒制备方法

按照制备工艺原理,膨润土颗粒的制备方法主要可分为 5 种:挤压法、辊压法、压实法、压实-破碎法

和湿-干-破碎法。其中,挤压法和辊压法在国际上应用最为普遍,压实-破碎法在国内应用最为广泛。各种方法的原理和优缺点如表 1 所示。

表 1 膨润土颗粒的制备方法比较

Table 1 Overview of manufacture techniques for bentonite pellets

方法	原理	颗粒性质	优点	缺点
挤压法	机械压实	形状规则 大小统一	工序简单,效率高,机械化程度高	需要特定的制样模具,粒径范围有限
辊压法				
压实法				
压实-破碎法	机械破碎	形状各异	可制备各种	工序多,效率低,难以控制
湿-干-破碎法	吸力固结	大小不一	粒径的颗粒	机械破碎的初始粒径
破碎法	机械破碎			

挤压法采用一对碾轮将膨润土粉末压入多孔不锈钢碾盘中,成型的膨润土“条”从碾盘下部挤出,可根据需要截取特定长度的膨润土颗粒,颗粒呈杆状或圆柱状(图 2)<sup>[7-8]</sup>。

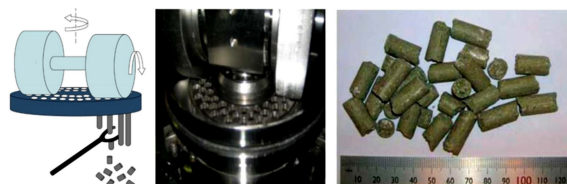


图 2 挤压法及其制备的颗粒<sup>[7-8]</sup>

Fig. 2 Extrusion method and produced pellets<sup>[7-8]</sup>

辊压法采用一组相向滚动的碾轮将膨润土粉末压入碾轮表面的凹“坑”中,形成枕状或杏仁状的颗粒(图 3)<sup>[7,9-11]</sup>。



图 3 辊压法及其制备的颗粒<sup>[7,11]</sup>

Fig. 3 Roller compaction method and produced pellets<sup>[7,11]</sup>

压实法是直接将膨润土粉末快速压入特定规格的模具中来制备高密度颗粒,颗粒呈规则的凸顶圆柱体状(图 4(a))<sup>[12]</sup>。

压实-破碎法先采用压力机将膨润土粉末压成高密度块体,然后采用破碎机将块体破碎成不同粒径的颗粒,最后筛分成不同粒组以配制不同粒径级配的颗粒混合物(图 4(b))。文献[6, 13, 14~19]分别采用该方法制备了不同粒径的高庙子(GMZ)膨润土颗粒。

湿-干-破碎法是先将膨润土粉末湿化成膏状,待其风干固结后,用破碎机械将其破碎成细小的颗粒,最后筛分成不同粒组以配制不同粒径级配的颗粒混合物<sup>[20]</sup>。

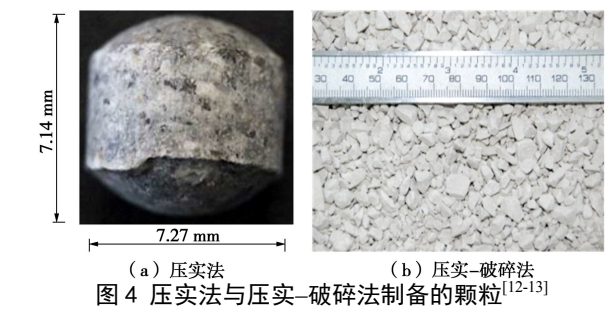


图 4 压实法与压实-破碎法制备的颗粒<sup>[12-13]</sup>

Fig. 4 Pellets manufactured by compaction and compaction-crushing methods<sup>[12-13]</sup>

实际上, 各种方法的颗粒产品质量(干密度、强度及微裂缝发育程度等)主要取决于膨润土粉末的矿物成分、初始含水率以及制样模具与制造工艺的精细化程度, 而与制造原理本身关系不大。各种颗粒制备方法各有利弊, 应根据工程实际需要来加以选择。条件允许时, 可以联合采用两种或多种方法以提高颗粒制备效率和达到特定的颗粒规格要求。

2 颗粒填充技术与堆积性质

2.1 填充技术

在地下原位填充试验和一些室内大型模拟填充试验中, 常采用机械设备将颗粒混合物填充到膨润土块体与围岩的缝隙中, 或者用于填充整个巷道。按照机械设备的工作原理, 颗粒填充技术主要包括带式输送法、螺旋输送法、气动喷射法和人工填充法(图 5), 其中螺旋输送法和气动喷射法应用最为广泛<sup>[21-22]</sup>。各种方法的优缺点和适用性如表 2 所示。

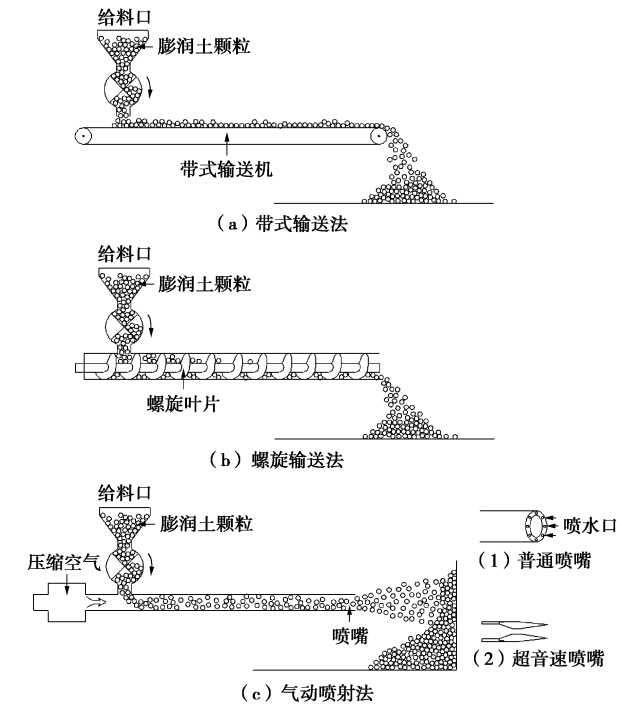


图 5 带式输送法、螺旋输送法和气动喷射法示意图

Fig. 5 Schematic diagrams of pellets emplaced by belt, auger and pneumatic conveying

表 2 膨润土颗粒的填充方法比较			
Table 2 Overview of filling techniques for bentonite pellets			
方法	主要优点	主要缺点	适用性
带式输送	效率高	粉尘多 易离析 设备笨重	填充较大的空隙或回填巷道
螺旋输送	效率较高 粉尘较少 均匀性较好	设备较笨重	填充较大的接缝、空隙或回填巷道
气动喷射	效率较高 堆积密度大	粉尘多 均匀性差	可填充各种接缝、空隙或回填巷道
人工填充	适应性强	粉尘多 效率低	可填充各种接缝、空隙或回填巷道

各种颗粒填充技术各具特色和局限性, 应根据实际情况加以选择利用。评价颗粒填充效果需关注 3 项指标: 堆积干密度、堆积均匀性和粉尘产生量。前两者直接影响到颗粒填充效果, 进而关系到整个工程屏障的缓冲性能; 而大量的粉尘将危害人体健康和机械设备的性能, 降低工作面能见度, 不利于准确操控机械设备, 将间接地影响到颗粒填充效果。因此, 提高填充干密度和均匀性、降低粉尘产生量是今后升级颗粒填充技术的关键突破点。

2.2 堆积干密度与均匀性

堆积干密度和均匀性是影响颗粒混合物水力-力学特性的重要因素<sup>[10]</sup>, 是处置库概念设计的关键指标之一, 通常通过颗粒填充试验来加以研究。按照填充区域的不同, 颗粒填充试验可分为 4 类: ①废物罐-围岩空隙填充试验; ②矩形槽填充试验; ③环形槽填充试验和④圆柱筒填充试验。

废物罐-围岩空隙填充试验是将颗粒混合物填充到真实的或模拟的废物罐-围岩空隙区域内, 然后取样测试堆积干密度和均匀性。在瑞士 Mont Terri 地下实验室开展的 EB 试验和 HE-E 试验中, 都采用螺旋输送法将膨润土颗粒填充到废物罐与围岩之间的空隙区域, 实测平均堆积干密度分别为 1.36, 1.457 g/cm<sup>3</sup>, 且都观测到了不同程度的颗粒离析现象<sup>[23-24]</sup>。文献[25]分析认为粗细颗粒沿堆积坡面的滚落速率和距离不同、细颗粒填充粗颗粒间的大孔隙是导致颗粒离析的主要原因。

矩形槽与环形槽填充试验是采用自由倾倒法或喷射法将颗粒混合物填充到长方体透明箱(图 6(a))或圆环形透明槽缝(图 6(b))中, 通过测算颗粒总质量和填充总体积来计算堆积干密度, 借助图像对比来分析堆积均匀性, 重点考察了填充技术和级配的影响。研究表明<sup>[26-27]</sup>: ①单一粒组、两粒组和满足 Fuller 级配的多粒组颗粒混合物的堆积干密度依次增大; ②采用气动喷射、锤击和振动等手段能显著提高颗粒堆积干密度; ③堆积均匀性由好到次依次为自由倾倒并



振实、自由倾倒不振实和喷射法。



图6 矩形槽和环形槽填充试验<sup>[26-27]</sup>

Fig. 6 Pellet filling tests in rectangle and annular gaps<sup>[26-27]</sup>

圆柱筒填充试验是将颗粒混合物倒入圆柱形透明容器中,经反复多次拍击、敦实、摇晃、翻转和振动容器,分别测算松散和致密堆积干密度,并通过对比试验前后的图像或级配来分析堆积均匀性。研究表明<sup>[11, 14-17]</sup>: ①敦实、摇晃、翻转和振动等可显著提高颗粒堆积干密度;②随着细颗粒含量从0增大至100%,两粒组混合物的堆积干密度先增大后减小;③随着级配模量从0.1增大至0.9,多粒组颗粒混合物的堆积干密度先增大后减小;④峰值堆积干密度随最小粒径与最大粒径之比的增大而减小;⑤细颗粒的填充效应和疏松效应、粗颗粒的挤占效应和壁效应以及颗粒间的楔效应是影响颗粒堆积干密度的主要机制;⑥颗粒混合物的堆积干密度可由非线性堆积模型预测<sup>[18]</sup>;⑦颗粒混合物的堆积均匀性随粒径特征指数(与粗细粒径比和质量比有关)的增大而减小<sup>[6, 19]</sup>。此外,堆积方式也对堆积干密度和均匀性具有重要影响<sup>[12]</sup>。

综上所述,颗粒混合物的堆积干密度和均匀性与填充技术、级配和堆积方式等因素有关。大多数研究主要侧重于堆积干密度,而对堆积均匀性研究较少且缺乏定量化研究。实际上,由于不同粒径的颗粒具有不同的运动特性,堆积混合物中必然出现颗粒离析现象和局部颗粒间大孔隙,进而可能引发管涌、侵蚀和失稳等工程灾害。因此,研究颗粒离析的物理力学机制、定量描述堆积均匀性和提出改善堆积均匀性的措施,是今后需要进一步开展的工作<sup>[6, 19]</sup>。

### 3 颗粒混合物的热传导特性

如图1所示,处置库运营过程中核废物产生的核素衰变热将经废物罐和缓冲/回填材料向围岩传递。作为一种缓冲/回填材料,颗粒混合物是介于废物罐与围岩之间的热传递介质,其热传导特性决定了处置库近场和远场的温度分布。因此,热传导特性是颗粒混合物的一项重要研究内容。

#### 3.1 热传导系数测试技术

颗粒混合物的热传导系数可通过热探针法、热平板法、热流计法和热箱法4种途径进行测试(图7)<sup>[8, 28]</sup>,其装置和原理分别如图7(a)~(d)所示。

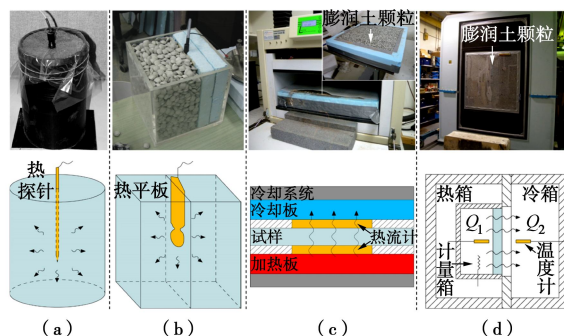


图7 颗粒混合物的热传导系数测试技术<sup>[8, 28]</sup>

Fig. 7 Measuring techniques of thermal conductivity for pellet mixtures<sup>[8, 28]</sup>

热探针法和热平板法属于瞬态法,通过探针(或平板)以恒定功率释放热量并监测邻近颗粒温度随时间的变化来计算热传导系数;热流计法和热箱法属于稳态法,通过施加恒定温度梯度并监测流过单位面积试样的热流量来计算热传导系数。

热探针法和热平板法仪器便携易用、测试效率高,但测试结果受探针(或平板)与颗粒的局部接触状态影响较大。热流计法和热箱法将颗粒混合物整体作为测试对象,克服了与颗粒的接触问题,测试结果较为可靠,但设备笨重不便携,测试效率低且成本较高(单次试验需要耗费大量的颗粒材料)。为了既高效又可靠地获得颗粒混合物在不同水力-力学状态下的热传导系数,应基于瞬态法和稳态法的基本原理,借鉴松散颗粒介质的热传导测试技术,同时考虑膨润土颗粒的特殊性(不均匀性、膨胀性和结构随吸力演化等),研发一套适用于膨润土颗粒混合物、颗粒与膨润土块体界面、颗粒与围岩界面的热传导测试技术和设备。

#### 3.2 热传导系数

利用不同的测试技术,不同学者对不同种类的颗粒混合物的热传导系数进行了试验研究。研究表明,颗粒混合物的热传导系数随干密度的增大而增大,随含水率的增大而增大,随温度的升高而增大(图8)<sup>[11, 25, 28-30]</sup>。

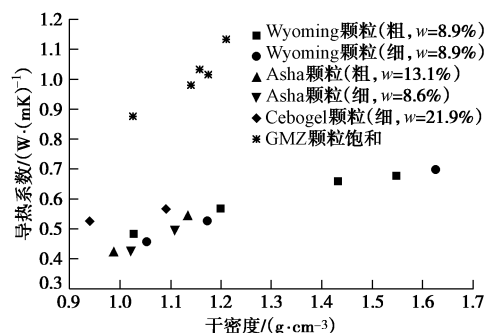


图8 热传导系数随干密度的变化<sup>[11, 25]</sup>

Fig. 8 Evolution of thermal conductivity with dry density<sup>[11, 25]</sup>

综上所述,目前对颗粒混合物热传导系数的研究

还很不充分, 现有文献报导中仅考虑了干密度、含水率和温度等影响因素。实际上, 在处置库运营过程中, 颗粒混合物将逐渐吸水饱和, 同时伴随着强烈的结构特征演化过程。在这一过程中, 颗粒混合物热传导系数的变化规律对处置库温度场预测和安全性能评价至关重要。因此, 全饱和度(吸力、含水率)范围内颗粒混合物热传导系数的变化规律、基于结构特征演化的热传导系数变化机理以及改善颗粒混合物热传导性能的技术措施, 是今后值得研究的几个课题。

## 4 颗粒及其混合物的水力性质

由于地下水的入渗过程极其缓慢, 处置库中的颗粒混合物将长期处于非饱和状态。研究非饱和颗粒混合物的水力性质(持水特性、渗透特性、管涌与侵蚀等), 是开展处置库安全评价的重要基础。

### 4.1 持水特性

研究表明, 随着吸力的降低, 单个颗粒的总孔隙比持续增大, 但饱和度先增大后基本保持不变<sup>[31-33]</sup>。在恒体积条件下的高吸力范围内, 不同干密度颗粒混合物的持水曲线基本重合(图9), 表明水主要存在于颗粒内部孔隙中, 持水性能主要取决于膨润土的矿物成分, 而与干密度无关; 在低吸力范围内, 颗粒内部孔隙达到饱和状态, 一部分水进入颗粒间大孔隙, 此时持水曲线与干密度有关<sup>[10]</sup>。

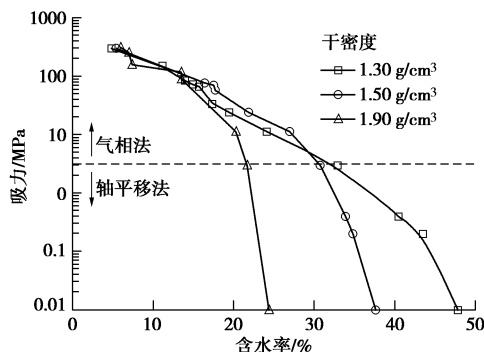


图9 不同干密度 FEBEX 膨润土颗粒混合物的持水曲线<sup>[10]</sup>

Fig. 9 Curves of water retention of FEBEX bentonite pellets with different dry densities<sup>[10]</sup>

实际处置库运营期间, 膨润土颗粒可能会遭受温度循环和干湿循环作用<sup>[13, 34]</sup>, 对持水曲线产生温度效应和滞回效应。温度对膨润土颗粒的持水特性及其滞回性的影响, 仍是有待研究的课题。

### 4.2 渗透特性

渗透特性包括饱和渗透与非饱和渗透两个方面。研究表明, 膨润土颗粒混合物的饱和渗透系数随干密度的增大而增大<sup>[10, 32, 35]</sup>。在相同干密度条件下, 颗粒混合物的饱和渗透系数与压实块体近似相等<sup>[6]</sup>。然而, 与压实膨润土相比, 水化过程中颗粒混合物的孔隙结

构变化更加剧烈, 导致渗透系数随水化时间持续发生显著变化。如图10所示, 渗透试验开始时, 颗粒之间存在大量相互连通的大孔隙, 故渗透系数较大; 随着试验的进行, 颗粒吸水膨胀导致颗粒间大孔隙急剧减小甚至被堵塞, 因此渗透系数迅速降低至稳定值。当饱和渗透系数达到稳定状态后, 尽管试样外观看起来已经均一化, 但干密度和含水率分布均表明试样仍未达到均一化<sup>[6]</sup>。

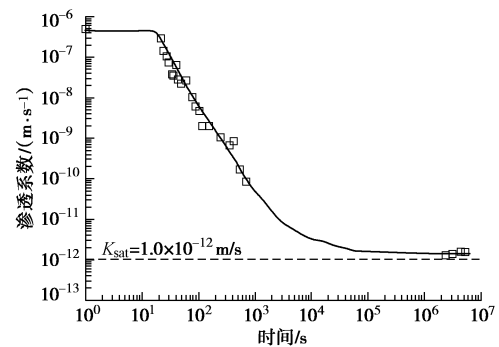


图10 FEBEX 膨润土颗粒混合物渗透系数随时间的演化<sup>[10]</sup>

Fig. 10 Evolution of hydraulic conductivity with time for FEBEX bentonite pellets<sup>[10]</sup>

颗粒混合物的非饱和渗透系数尚鲜见研究报导。实际上, 文献<sup>[34, 36]</sup>已经对 MX80 膨润土颗粒混合物开展了小型水-力耦合模型试验, 分别监测了试样上下端同时通水和仅底端通水过程中不同截面的相对湿度变化, 但未给出相应的非饱和渗透系数函数。文献<sup>[6, 37]</sup>采用瞬时截面法测试或预测了不同条件(温度、干密度等)下颗粒混合物的非饱和渗透系数, 结果表明, 颗粒混合物的非饱和渗透系数随吸力的降低而先减小后增大, 随温度的升高而增大, 随干密度的增大而减小, 随颗粒粒径的增大而增大。然而, 地下水化学对非饱和渗透特性的影响尚待研究。

### 4.3 管涌与侵蚀

除了渗流与结构演化, 颗粒混合物水化过程中的另一个重要性质是管涌与侵蚀。许多学者通过圆柱管注水试验<sup>[7]</sup>、矩形槽注水试验<sup>[7]</sup>、环形槽注水试验<sup>[27]</sup>和模拟巷道接缝注水试验<sup>[38]</sup>研究发现, 开始注水时水流优先沿着相互连通的颗粒间大孔隙流动, 并侵蚀沿程细颗粒和膨润土胶体。随着颗粒吸水膨胀和胶体阻塞, 颗粒间大孔隙逐渐闭合, 管涌和侵蚀现象逐渐减弱直至消失。

圆柱管注水试验<sup>[7]</sup>结果表明, 管涌持续时间与侵蚀速率主要同注水速率有关: 注水速率越大, 则管涌持续时间越长, 侵蚀速率也越大; 在双对数坐标下, 累计侵蚀量与累计水流量呈线性关系。此外, 膨润土类型、颗粒形状与尺寸、细颗粒的分布情况、溶液盐度也对管涌和侵蚀具有显著影响, 但由于缺乏系统的

研究, 这些因素的影响规律仍不明确。矩形槽<sup>[7]</sup>、环形槽<sup>[27]</sup>和模拟巷道接缝<sup>[38]</sup>注水试验从更大尺度上进一步研究了注水速率、溶液浓度、颗粒形状和大小及膨润土类型等因素对管涌行为的影响。但由于试验成果较少且不够系统, 尚不足以形成完整的结论。

不同于非膨胀性颗粒土, 膨润土颗粒混合物的管涌和侵蚀行为是一个更加复杂的过程。管涌和侵蚀过程中, 颗粒混合物中的细小颗粒或胶体被优势渗流侵蚀流失, 导致颗粒混合物的整体干密度降低, 进而引起膨胀力降低而饱和渗透系数增大, 使其缓冲性能大幅衰减。在已有认知的基础上, 开展管涌和侵蚀的影响因素及其机理研究并提出抑制管涌和侵蚀的技术措施, 是今后针对颗粒混合物的重要研究方向之一。

## 5 颗粒及其混合物的结构演化规律

颗粒及其混合物的热-水-力特性与其结构特征密切相关。目前, 关于颗粒及其混合物的结构演化规律的研究成果较少, 仅部分学者采用 MIP 和  $\mu$ -CT 两种手段分别观测和分析了单个颗粒和颗粒混合物在水化过程中的结构演化规律。

### 5.1 单个颗粒的结构演化规律

采用  $\mu$ -CT 扫描和 MIP 试验观测表明<sup>[31]</sup>, 吸力 113 MPa 的由压实法制备的单个颗粒内部尤其是靠近边缘部分存在明显的裂隙, 其孔径分布呈双峰形态 (图 11 (a) 和 (e))。随着吸力的降低, 由于颗粒内部不同性质的物质吸水发生不均匀膨胀, 导致颗粒内部的裂隙数量增多, 裂隙连通性增强, 颗粒宏观体积增大 (图 11 (b) ~ (d)); 集合体内孔隙数量减少, 集合体间孔隙数量增多且平均孔径增大 (图 11 (f) ~ (h))。

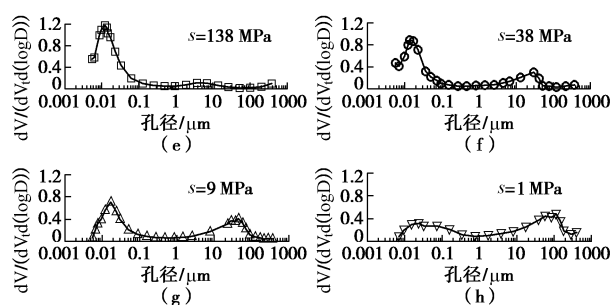
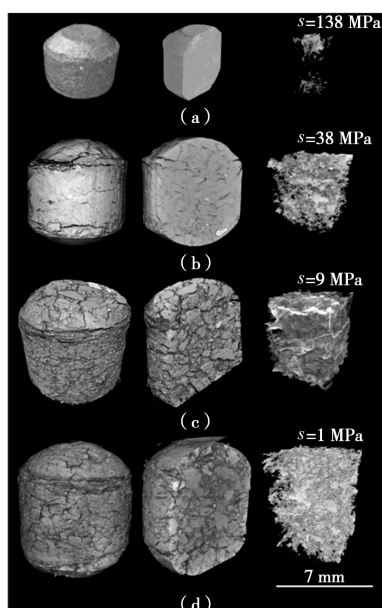


图 11 不同吸力下单个颗粒的结构特征<sup>[31]</sup>

Fig. 11 Structural characteristics of single pellet at different suctions<sup>[31]</sup>

### 5.2 颗粒混合物的结构演化规律

在通水水化过程中, 颗粒混合物的结构特征将发生显著改变。文献[39]采用  $\mu$ -CT 技术观测了 FoCa 膨润土颗粒/粉末 (50/50) 混合物在仅底端通水情况下的结构特征演化过程。结果显示 (图 12 (a)), 随着水流自下而上进入试样, 膨润土颗粒由于吸水膨胀而密度逐渐降低, 粉末由于受颗粒膨胀的压缩作用而密度逐渐增大, 颗粒轮廓逐渐模糊, 最终经历 165 d 后试样各处的干密度近似相等, 基本达到了均一化状态。

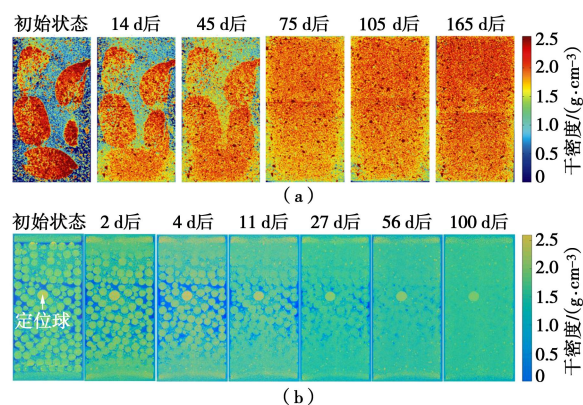


图 12 水化过程中颗粒混合物的结构演化<sup>[39-40]</sup>

Fig. 12 Structural evolution of pellet mixtures during hydration<sup>[39-40]</sup>

文献[31, 40]采用  $\mu$ -CT 技术观测了 MX80 膨润土颗粒/粉末 (80/20) 在上下两端同时通水水化过程中的结构演化过程。结果表明, 试样上、下两端的颗粒迅速水化膨胀, 而试样中部的颗粒水化膨胀过程极其缓慢, 及至水化 56 d 时部分颗粒和颗粒间孔隙仍然清晰可辨 (图 12 (b))。最终经历 100 d 后, 试样各处的干密度近似相等, 基本达到了均一化状态。

综上所述, 目前主要采用  $\mu$ -CT 和 MIP 两种手段分别观测了单个颗粒在不同吸力状态下和颗粒混合物在通水水化过程中的结构特征演化规律, 而对于颗粒混合物在不同吸力状态下的结构特征演化规律尚缺乏研究。此外, 温度、孔隙水化学、外荷载等因素对颗



粒混合物结构特征的影响也有待研究。

## 6 颗粒及其混合物的力学性质

### 6.1 颗粒强度与耐磨性

颗粒应具有足够的强度和耐磨性,以减小在滚动、撞击和压实过程中的破损程度。对于单个颗粒而言,强度和耐磨性是评价其工程性能的重要力学指标。颗粒的强度常采用恒应变速率液压试验机(图13(a))和手动压力仪(图13(b))来测定,颗粒的耐磨性常采用耐磨试验机(图13(c))来测试<sup>[8]</sup>。研究表明<sup>[8,11]</sup>,在一定含水率范围内,颗粒强度随含水率的增大而增大,且同一含水率下粒径大的颗粒强度更高;颗粒强度越高,耐磨性越好。

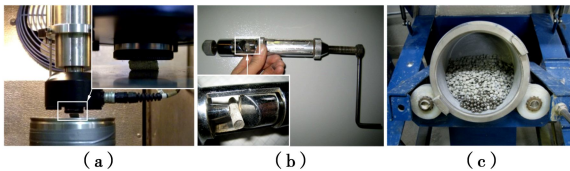


图13 颗粒强度和耐磨性试验设备<sup>[8]</sup>

Fig. 13 Devices used in pellet strength and abrasion tests<sup>[8]</sup>

目前,主要针对室温条件下、含水率低和形状规则的颗粒开展了简单的强度和耐磨性试验。今后应针对不同温度、不同含水率和不同形状的颗粒开展无侧限压缩试验、抗剪强度试验和多种形式的耐磨性试验(不同倾角溜滑、不同高度倾倒、不同转速翻滚、不同频率振动等),综合评价其强度和耐磨性。

### 6.2 膨胀特性

膨润土颗粒混合物的主要矿物成分为蒙脱石,具有显著的吸水膨胀特性。在恒体积条件下,蒙脱石吸水膨胀在宏观上表现为膨胀力,在非恒体积条件下则表现为膨胀变形。研究表明,颗粒混合物的最终膨胀力随试样干密度的增大而增大,随掺砂率的增大而减小,但膨胀力发展过程受试样尺寸的影响较大<sup>[9-10,35]</sup>。与压实膨润土块体类似<sup>[41]</sup>,不同干密度和不同尺寸条件下,FeCa颗粒/粉末混合物(50/50)试样的膨胀力时程曲线均呈双峰形态(图14):膨胀力随水化时间先迅速增大至一个峰值,随后回落至一个谷值,然后以较小的速率再次增大至稳定值<sup>[9]</sup>。对于满足Fuller级配的FEBEX膨润土颗粒混合物(干密度 $1.36\text{ g/cm}^3$ ),其膨胀力时程曲线在达到峰值后基本不变,然后再逐渐增长至稳定值<sup>[42]</sup>(图14)。由此可见,颗粒混合物的膨胀力发展过程与粒径级配有关。此外,随着吸力从 $300\text{ MPa}$ 逐级降低至 $3\text{ MPa}$ ,颗粒混合物的膨胀力先增大后轻微减小,膨胀力减小与应力路径贴近LC屈服线有关<sup>[10,43]</sup>。

一些学者研究了温度对颗粒混合物膨胀力的影

响,但研究结果不尽相同。对于MX80颗粒混合物,文献[44]发现膨胀力随温度的升高而降低;文献[34]的研究则表明膨胀力随温度的升高而增大,而文献[35]发现膨胀力受温度的影响不明显。

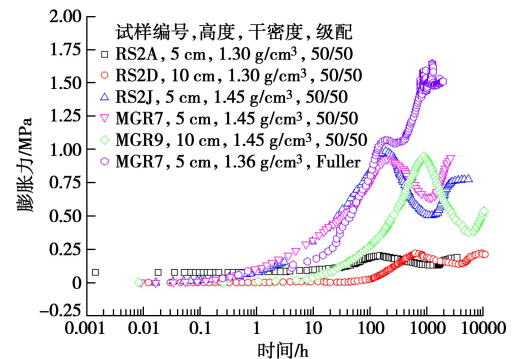
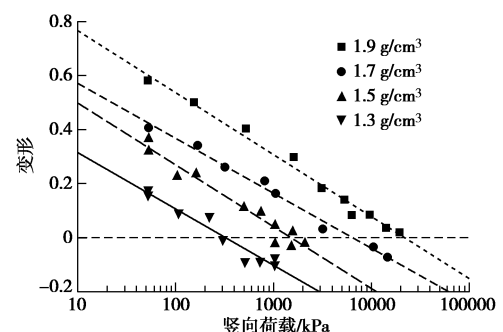


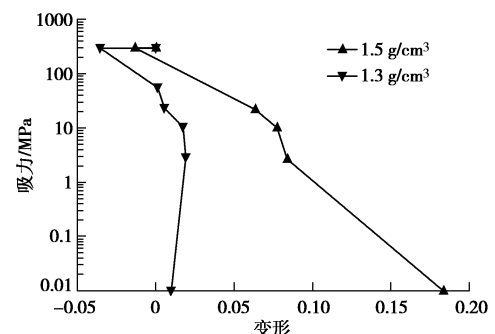
图14 不同条件下颗粒混合物的膨胀力时程曲线<sup>[9,42]</sup>

Fig. 14 Evolution of swelling pressure with time for pellet mixtures under different conditions<sup>[9,42]</sup>

在恒定荷载下通水水化,颗粒混合物试样膨胀稳定时的变形与干密度和竖向荷载有关<sup>[10]</sup>。在相同干密度条件下,颗粒混合物的膨胀变形与竖向荷载的对数呈线性关系;在同一竖向荷载条件下,干密度越大,膨胀变形越大(图15(a))。在恒定荷载下逐级降低吸力(气相法),低干密度颗粒混合物的变形先增大后轻微减小,而高干密度时则持续增大<sup>[10]</sup>(图15(b))。



(a) 恒定荷载通水水化



(b) 恒定荷载降低吸力

图15 膨胀变形与竖向荷载及吸力的关系<sup>[10]</sup>

Fig. 15 Evolution of swelling strain with vertical stress and suction<sup>[10]</sup>

此外,通水水化时试样先小幅坍塌然后膨胀,膨

胀变形达到峰值后又再次坍塌；气相法逐渐减低吸力时，不存在初始坍塌现象，试样持续膨胀到峰值后坍塌至稳定值<sup>[45]</sup>。造成这种区别的原因在于两种水化过程中的颗粒-水相互作用机理不同：通水水化过程中，颗粒间孔隙迅速被水饱和，导致颗粒间相互作用力减弱，在竖向荷载作用下颗粒间错动而引发坍塌；气相法降低吸力过程中，颗粒间孔隙一直处于非饱和状态，颗粒内、外的孔隙水势差异很小，毛细吸力引起的颗粒错动较小，而颗粒吸水膨胀相对显著，故不存在初始坍塌。

尽管对颗粒混合物的膨胀特性已经开展了不少研究工作，但温度、级配及孔隙水化学等因素对膨胀力和膨胀变形的影响及膨胀力和膨胀变形的形成机理与发展过程仍有待进一步研究。

### 6.3 压实与压缩特性

文献[46]对7种不同膨润土颗粒混合物分别开展了3种不同级配下的击实试验，结果表明：压实性质主要受膨润土类型影响，而受级配影响较小；最优含水率随塑限的增大而线性增大，最大干密度随塑限的增大而减小。文献[20, 29]分别对不同级配的巩义膨润土颗粒混合物和高庙子膨润土颗粒混合物开展了静力压实试验，结果表明级配对最优含水率的影响较小，但最大干密度随细颗粒含量的增多而增大。

压缩试验结果表明<sup>[10, 29]</sup>，颗粒混合物的压缩系数随竖向应力的增大而先增大后减小，随含水率的增大而增大；弹性压缩系数 $\kappa$ 和塑性压缩系数 $\lambda$ 均随吸力的降低而增大（图16）；级配对压缩指数与回弹系数等压缩性能具有一定影响，但主要表现在含水率较低的情况下。

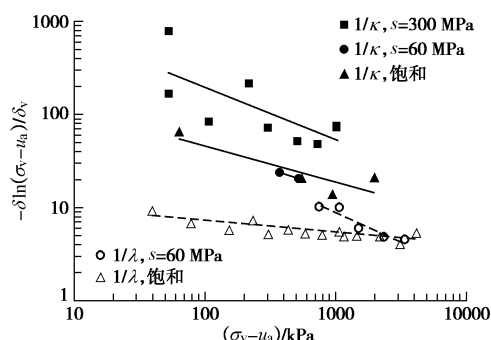


图16 弹、塑性压缩系数随吸力的变化<sup>[10]</sup>

Fig. 16 Evolution of elastoplastic compressibility coefficients ( $\kappa$  and  $\lambda$ ) with suction<sup>[10]</sup>

基于双孔结构理论，文献[45, 47]采用宏观结构吸力和微观结构吸力分别描述颗粒间孔隙水势和颗粒内孔隙水势，采用BBM模型和BE<sub>x</sub>M模型分别描述微、宏观结构变形，分别建立了适用于描述颗粒混合物水力-力学行为的本构模型。所不同的是，前者将颗

粒混合物简化为一维二元介质模型，并假设微、宏观相对渗透系数与相应的饱和度呈幂函数关系，后者假设颗粒间与颗粒内的孔隙水交换呈线性关系且仅由吸力驱动。

目前，关于颗粒混合物的力学性质研究还处于宏观描述阶段，而缺乏对其微观力学行为（如颗粒运动、破碎、膨胀与胶结融合等）的研究。在今后的研究中，应综合借鉴非膨胀颗粒土和压实膨胀性土的研究经验，借助 $\mu$ -CT、NMRI等成像技术，揭示颗粒混合物在不同应力状态下的微观力学行为机理，进而建立颗粒混合物的宏-细-微三重尺度耦合理论及本构模型。

## 7 结语及建议

膨润土颗粒混合物是一种重要的缓冲/回填材料。20世纪80年代末以来，国内外学者针对膨润土颗粒的制备方法、填充技术与堆积性质、热传导特性、水力特性、结构演化规律及力学特性等方面开展了大量研究，主要成果如下：

(1) 膨润土颗粒可由挤压法、辊压法、压实法、压实-破碎法和湿-干-破碎法制备，可通过带式输送法、螺旋输送法、气动喷射法和人工填充法进行填充。

(2) 颗粒混合物的堆积干密度和均匀性与填充技术、级配、堆积方式等因素有关，其热传导系数与干密度、含水率和温度等因素有关，其水力-力学特性与级配、干密度及温度等因素有关。

(3) 水化过程中颗粒混合物由初始松散结构逐渐转变为胶结融合结构，及至水化饱和后基本达到宏观上的均一化结构，但微观层次的均一化过程仍将持续漫长的时间。

纵观国内外文献报导，目前对膨润土颗粒混合物的研究范围较为广泛，但研究深度仍相对较浅。考虑到处置库实际运营工况的复杂性，科学高效的颗粒混合物填充技术、多场（热-水-化-力）耦合条件下的颗粒混合物水力-力学特性及结构演化规律是今后值得深入探索的研究方向。

### 参考文献：

- [1] 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))
- [2] 陈永贵, 贾灵艳, 叶为民, 等. 施工接缝对缓冲材料水-力



- 特性影响研究进展[J]. 岩土工程学报, 2017, **39**(1): 138 - 147. (CHEN Yong-gui, JIA Ling-yan, YE Wei-min, et al. Advances in hydro-mechanical behaviors of buffer materials under effect of technological gaps[J]. Chinese Journal of Geotechnical Engineering, 2017, **39**(1): 138 - 147. (in Chinese))
- [3] WANG Q, TANG A M, CUI Y J, et al. The effects of technological voids on the hydro-mechanical behaviour of compacted bentonite-sand mixture[J]. Soils and Foundations, 2013, **53**(2): 232 - 245.
- [4] SALO J-P, KUKKOLA T. Bentonite Pellets, an Alternative Buffer Material for Spent Fuel Canister Deposition Holes[R]. Paris: NEA/CEC Workshop "Sealing of Radioactive Waste Repositories" (Braunschweig, Germany), OECD, 1989.
- [5] DIXON D, SANDÉN T, JONSSON E, et al. Backfilling of Deposition Tunnels: Use of Bentonite Pellets[R]. Stockholm: Svensk Kärnbränslehantering AB, SKB P-11-44, 2011.
- [6] 刘樟荣. 高庙子膨润土颗粒混合物的堆积性质与考虑温度影响的水力特性研究[D]. 上海: 同济大学, 2019. (LIU Zhang-rong. Investigation on the Packing Behaviour and Thermal-Hydraulic Properties of GMZ Bentonite Pellet Mixtures[D]. Shanghai: Tongji University, 2019. (in Chinese))
- [7] ANDERSSON L, SANDÉN T. Optimization of Backfill Pellet Properties, ÅSKAR DP2, Laboratory Tests[R]. Stockholm: Svensk Kärnbränslehantering AB, SKB R-12-18, 2012.
- [8] MARJAVAARA P, HOLT E, SJÖBLOM V. Customized Bentonite Pellets: Manufacturing, Performance and Gap Filling Properties[R]. Eurajoki: Posiva OY, 2013.
- [9] IMBERT C, VILLAR M V. Hydro-mechanical response of a bentonite pellets/powder mixture upon infiltration[J]. Applied Clay Science, 2006, **32**(3/4): 197 - 209.
- [10] HOFFMANN C, ALONSO E E, ROMERO E. Hydro-mechanical behaviour of bentonite pellet mixtures[J]. Physics and Chemistry of the Earth, 2007, **32**(8/9/10/11/12/13/14): 832 - 849.
- [11] KIM C S, MAN A, DIXON D, et al. Clay-Based Pellets for Use in Tunnel Backfill and as Gap Fill in a Deep Geological Repository: Characterisation of Thermal-mechanical Properties[R]. Toronto: Nuclear Waste Management Organisation, 2012.
- [12] MOLINERO-GUERRA A, MOKNI N, DELAGE P, et al. In-depth characterisation of a mixture composed of powder/pellets MX80 bentonite[J]. Applied Clay Science, 2017, **135**: 538 - 546.
- [13] CHEN L, LIU Y M, WANG J, et al. Investigation of the thermal-hydro-mechanical (THM) behavior of GMZ bentonite in the China-Mock-up test[J]. Engineering Geology, 2014, **172**: 57 - 68.
- [14] 张虎元, 王学文, 刘平, 等. 缓冲回填材料砌块接缝密封及愈合研究[J]. 岩石力学与工程学报, 2016, **35**(增刊 2): 3605 - 3614. (ZHANG Hu-yuan, WANG Xue-wen, LIU Ping, et al. Sealing and healing of compacted bentonite block joints in HLW disposal[J]. Chinese Journal of Rock Mechanics and Engineering, 2016, **35**(S2): 3605 - 3614. (in Chinese))
- [15] 陈香波. 颗粒膨润土堆积性质及压实性质研究[D]. 兰州: 兰州大学, 2018. (CHEN Xiang-bo. Packing and Static Compaction of Pellet Bentonite for HLW Disposal[D]. Lanzhou: Lanzhou University, 2018. (in Chinese))
- [16] ZHANG Z, YE W M, LIU Z R, et al. Influences of PSD curve and vibration on the packing dry density of crushed bentonite pellet mixtures[J]. Construction and Building Materials, 2018, **185**: 246 - 255.
- [17] LIU Z R, YE W M, ZHANG Z, et al. Particle size ratio and distribution effects on packing behaviour of crushed GMZ bentonite pellets[J]. Powder Technology, 2019, **351**: 92 - 101.
- [18] LIU Z R, YE W M, ZHANG Z, et al. A nonlinear particle packing model for multi-sized granular soils[J]. Construction and Building Materials, 2019, **221**: 274 - 282.
- [19] LIU Z R, YE W M, CUI Y J, et al. Investigation on vibration-induced segregation behaviour of crushed GMZ bentonite pellet mixtures[J]. Construction and Building Materials, 2020, **241**: 117949.
- [20] 谈云志, 李辉, 彭帆, 等. 膨润土团粒的压实性能研究[J]. 防灾减灾工程学报, 2018, **38**(5): 773 - 780. (TANG Yun-zhi, LI Hui, PENG Fan, et al. Compaction properties of bentonite agglomerate[J]. Journal of Disaster Prevention and Mitigation Engineering, 2018, **38**(5): 773 - 780. (in Chinese))
- [21] FERRARI A, SEIPHOORI A, RÜEDI J, et al. Shot-clay MX-80 bentonite: An assessment of the hydro-mechanical behaviour[J]. Engineering Geology, 2014, **173**: 10 - 18.
- [22] KÖHLER S, MAYOR J C, NUSSBAUM C, et al. Report of the Construction of the HE-E Experiment[R]. PEBS Report, 2012.
- [23] KÖHLER S, MAYOR J C, NUSSBAUM C, et al. Report of the construction of the HE-E experiment[R]. PEBS Report, 2012.
- [24] GARCÍA-SIÑERIZ J L, VILLAR M V, REY M, et al. Engineered barrier of bentonite pellets and compacted blocks: State after reaching saturation[J]. Engineering Geology, 2015, **192**: 33 - 45.

- [25] MASUDA R, ASANO H, TOGURI S, et al. Buffer construction technique using granular bentonite[J]. Journal of nuclear science and technology, 2007, **44**(3): 448 – 455.
- [26] MARJAVAARA P, KIVIKOSKI H. Filling the gap between buffer and rock in the deposition hole[R]. Eurajoki: Posiva OY, 2011.
- [27] ÅBERG A. Effects of Water Inflow on the Buffer: An Experimental Study[R]. Stockholm: Svensk Kärnbränslehantering AB, SKB Rapport R-09-29, 2009.
- [28] KIVIKOSKI H, HEIMONEN I, HYTTINEN H. Bentonite Pellet Thermal Conductivity Techniques and Measurements [R]. Eurajoki: Posiva OY, 2015.
- [29] 马国梁. 膨润土颗粒材料的工程性能研究[D]. 兰州: 兰州大学, 2018. (MA Guo-liang. Engineering Properties of Granular Bentonite Materials for HLW Disposal[D]. Lanzhou: Lanzhou University, 2018. (in Chinese))
- [30] WIECZOREK K, MIEHE R, GARITTE B. Thermal Characterisation of HE-E Buffer[R]. PEBS Report, DELIVERABLE (D-N°: 2.2-9), 2013.
- [31] MOLINERO-GUERRA A. Experimental and Numerical Characterizations of the Hydro-Mechanical Behavior of a Heterogeneous Material: Pellet/Powder Bentonite Mixture[D]. Paris: University of Paris-Est, 2018.
- [32] MOLINERO-GUERRA A, CUI Y J, HE Y, et al. Characterization of water retention, compressibility and swelling properties of a pellet/powder bentonite mixture[J]. Engineering Geology, 2019, **248**: 14 – 21.
- [33] MOLINERO-GUERRA A, DELAGE P, CUI Y J, et al. Water-retention properties and microstructure changes of a bentonite pellet upon wetting/drying; application to radioactive waste disposal[J]. Géotechnique, 2020, **70**(3): 199 – 209.
- [34] VILLAR M V, MARTÍN P L, ROMERO F J. Long-term THM Tests Reports: THM Cells for the HE-E Test: Update of Results Until February 2014[R]. Madrid: CIEMAT, 2014.
- [35] KARNLAND O, NILSSON U, WEBER H, et al. Sealing ability of wyoming bentonite pellets foreseen as buffer material-Laboratory results[J]. Physics and Chemistry of the Earth, 2008, **33**: S472 – S475.
- [36] MOLINERO GUERRA A, CUI Y J, MOKNI N, et al. Investigation of the hydro-mechanical behaviour of a pellet/powder MX80 bentonite mixture using an infiltration column[J]. Engineering Geology, 2018, **243**: 18 – 25.
- [37] 苏振妍. 颗粒膨润土材料持水性能及渗透性能研究[D]. 兰州: 兰州大学, 2019. (SU Zhen-yan. The Water Retention and Permeability of Granular Bentonite Material for HLW Disposal[D]. Lanzhou: Lanzhou University, 2019. (in Chinese))
- [38] DIXON D, LUNDIN C, ÖRTENDAHL E, et al. Deep Repository–Engineered Barrier Systems: Half Scale Tests to Examine Water Uptake by Bentonite Pellets in a Block-Pellet Backfill System[R]. Stockholm: Svensk Kärnbränslehantering AB, 2008.
- [39] VAN GEET M, VOLCKAERT G, ROELS S. The use of microfocus X-ray computed tomography in characterising the hydration of a clay pellet/powder mixture[J]. Applied Clay Science, 2005, **29**(2): 73 – 87.
- [40] MOLINERO-GUERRA A, AIMEDIEU P, BORNERT M, et al. Analysis of the structural changes of a pellet/powder bentonite mixture upon wetting by X-ray computed microtomography[J]. Applied Clay Science, 2018, **165**: 164 – 169.
- [41] 叶为民, 刘樟荣, 崔玉军, 等. 膨润土膨胀力时程曲线的形态特征及其模拟[J]. 岩土工程学报, 2020, **42**(1): 29 – 36. (YE Wei-min, LIU Zhang-rong, CUI Yu-jun, et al. Features and modelling of time-evolution curves of swelling pressure of bentonite[J]. Chinese Journal of Geotechnical Engineering, 2020, **42**(1): 29 – 36. (in Chinese))
- [42] VILLAR M V. EB experiment Laboratory infiltration tests report[R]. Madrid: CIEMAT, 2012.
- [43] ZHANG Z, YE W M, LIU Z R, et al. Mechanical behavior of GMZ bentonite pellet mixtures over a wide suction range [J]. Engineering Geology, 2020, **264**: 105383.
- [44] PUSCH R, BLUEMLING P, JOHNSON L. Performance of strongly compressed MX-80 pellets under repository-like conditions[J]. Applied Clay Science, 2003, **23**: 239 – 244.
- [45] ALONSO E E, ROMERO E, HOFFMANN C. Hydromechanical behaviour of compacted granular expansive mixtures: experimental and constitutive study[J]. Géotechnique, 2011, **61**(4): 329 – 344.
- [46] ITO H. Compaction properties of granular bentonites[J]. Applied Clay Science, 2006, **31**(1/2): 47 – 55.
- [47] GENS A, VALLEJÁN B, SÁNCHEZ M, et al. Hydromechanical behaviour of a heterogeneous compacted soil: experimental observations and modelling[J]. Géotechnique, 2011, **61**(5): 367 – 386.