

DOI: 10.11779/CJGE20211496

# 膨润土吸湿过程中膨胀力演化及水分分布特征

梁维云<sup>1,2</sup>, 韦昌富<sup>\*2</sup>, 张 芹<sup>2</sup>, 秦刘洋<sup>2</sup>, 文松松<sup>2</sup>, 颜荣涛<sup>2</sup>

(1. 信阳师范学院河南省非饱和土与特殊土工程技术研究中心/建筑与土木工程学院, 河南 信阳 464000; 2. 桂林理工大学广西建筑新能源与节能重点实验室, 广西 桂林 541004)

**摘 要:** 压实膨润土被广泛地用作密封阻隔材料, 其膨胀力变化对于工程设计十分重要。采用蒸汽平衡法控制吸力, 研究增湿过程中的膨胀力变化规律, 并采用核磁共振(NMR)和X射线衍射(XRD)技术, 分析吸湿过程中土体水分分布状态与宏观膨胀行为的关联机制。结果表明, 在控制湿度条件下, 随着吸力降低, 膨胀力先线性增加后稍稍降低; 当吸力超过 21.8 MPa 后, 不同干密度试样的含水率基本一致, 在低吸力段, 含水率随干密度降低而增加; 吸湿过程中膨润土矿物晶层间逐层吸水, 形成不超过 2 层水分子厚度吸附水; 利用  $T_2$  分布曲线计算了不同干密度试样的吸附水和毛细水含量, 发现膨润土中主要为吸附水, 存在少量毛细水(<5%)。分析认为, 在吸湿过程中, 水分首先吸附到层间区域, 膨胀力线性增加, 当形成少量毛细水后, 颗粒滑移导致膨胀力降低。即, 膨胀力的演化在高吸力下受层间水合作用控制, 在低吸力下受孔隙结构变化影响。

**关键词:** 膨润土; 吸力; 膨胀力; 水分分布状态; 核磁共振技术; X 射线衍射技术

中图分类号: TU443

文献标识码: A

文章编号: 1000-4548(2023)02-0283-09

**作者简介:** 梁维云(1990—), 男, 博士, 讲师, 主要从事土体化学-力学耦合特性方面的研究工作。E-mail: lwxy2013@163.com。

## Swelling pressure evolution and water distribution characteristics of bentonite during wetting process

LIANG Weiyun<sup>1,2</sup>, WEI Changfu<sup>2</sup>, ZHANG Qin<sup>2</sup>, QIN Liuyang<sup>2</sup>, WEN Songsong<sup>2</sup>, YAN Rongtao<sup>2</sup>

(1. Henan Unsaturated Soil and Special Soil Engineering Technology Research Center, College of Architecture and Civil Engineering, Xinyang Normal University, Xinyang 464000, China; 2. Guangxi Key Laboratory of New Energy and Building Energy Saving, Guilin University of Technology, Guilin 541004, China)

**Abstract:** The compacted bentonite is widely used as the sealing barrier material, and its swelling pressure is regarded as an important design index. A device based on vapor equilibrium technique is designed for measuring the swelling pressure of expansive soils in unsaturated environment. The nuclear magnetic resonance (NMR) and X-ray diffraction (XRD) techniques are used to analyze the correlation mechanism between water distribution and macroscopic swelling behaviors of the bentonite during wetting process. The test results show that under the relative humidity control, with the decrease of the suction, the swelling pressure first increases linearly and then decreases slightly. When the suction exceeds 21.8 MPa, the water content of the samples with different dry densities is basically the same. In the low suction range, the water content increases with the decrease of the dry density. During the wetting process, the interlayers of the bentonite absorb water layer by layer, forming no more than two layers of adsorbed water. According to the wetting curves with different dry densities, the contents of the adsorbed and capillary water are calculated using the  $T_2$  distribution curve. It is found that there is mainly the adsorbed water in the bentonite, with a small amount of capillary water (<5%). The analysis shows that water is first adsorbed to the interlayer region, and the swelling pressure increases linearly. When a small amount of the capillary water is formed, particle slip leads to a decrease in the swelling pressure. Therefore, the swelling pressure evolution during the wetting process is controlled by interlayer hydration under high suction and affected by changes in pore structure under low suction.

**Key words:** bentonite; suction; swelling pressure; water distribution state; NMR; XRD

## 0 引 言

在高放射性核废料处置库建设中, 由于膨润土具

基金项目: 国家自然科学基金项目(11962004); 广西科技基地和人才专项项目(桂科 AD20325010); 广西岩土力学与工程重点实验室项目(桂科岩 21-XT-3); 河南省高等学校重点科研项目(23A560016)

收稿日期: 2021-12-16

\*通信作者(E-mail: cfwei@whrsm.ac.cn)

有高膨胀性、强吸附性和低渗透性等特性，被用作缓冲/回填材料，起密封/固定废物罐和防止核素迁移的作用<sup>[1]</sup>。研究表明，膨润土中水分大多以水蒸气形式传递，并且土体长时间保持非饱和状态<sup>[2]</sup>，在湿化过程中产生过大的膨胀力会导致围岩破坏，处置库失效。因此，有必要研究膨润土在增湿过程中的膨胀力变化。

膨胀土在限制膨胀条件下增湿产生的膨胀力，其既与初始试样状态有关，又与增湿后的含水率有关<sup>[3-6]</sup>。丁振洲等<sup>[7]</sup>利用滴定法进行增湿，发现前期增湿会产生较大的膨胀力，达到一定程度后出现拐点，之后膨胀力缓慢增加且趋于线性。何芳婵等<sup>[8]</sup>将不同体积的水直接注入试验盒中来控制含水率，也得到类似规律。这种方法通过加水控制土体含水率，可以近似模拟降雨过程中含水率的变化，但是控制方法不精确，也没有考虑环境湿度变化导致的含水率变化影响。

在控制吸力条件下增湿可以精确控制吸力大小，结合恒体积法可以测量膨胀土增湿至不同非饱和程度的膨胀力。其中，控制吸力的方法包括蒸汽平衡法<sup>[9-14]</sup>、轴平移法<sup>[11-12]</sup>和渗析法<sup>[13-14]</sup>。Lloret 等<sup>[9]</sup>将吸力降低过程中膨胀力变化分为 3 个阶段：在第一阶段，吸力减小导致膨胀力迅速增加到第一峰值；第二阶段，宏观结构坍塌，膨胀力降低；第三阶段，微观结构膨胀，膨胀力再次增加达到最大值。Zhang 等<sup>[14]</sup>测试了广吸力范围内压实 GMZ 膨润土颗粒混合物的膨胀力，结果表明随着吸力降低，蒸汽平衡法测试的膨胀力单调增加，而渗析法测试的膨胀力曲线存在塌陷现象。试验结果表明随着吸力降低，总体上膨胀力表现出增加趋势，但是吸力与膨胀力曲线并非单调增加。这是由于压实膨润土通常具有双孔隙结构<sup>[15]</sup>，吸湿过程中的水分吸附导致双孔隙结构重分布，层间孔隙扩张，大孔隙坍塌，因此需要更多的从微观角度揭示膨润土吸湿过程中的膨胀力变化。

现有的研究大多采用 X 射线衍射 (XRD) 技术，分析土体吸湿过程中的层间水分分布特征。Saiyouri 等<sup>[16]</sup>利用 XRD 技术分析膨润土的吸湿水化过程，指出湿化过程层间水厚度 (interlayer water) 增加至 4 层，并伴随着颗粒层叠尺寸的减小。Likos 等<sup>[17]</sup>测试了不同阳离子基膨润土在吸湿过程中的吸附水变化，发现膨胀力的变化受层间吸附水层数的影响。Villar 等<sup>[18]</sup>测量了不同干密度和含水率压实样的晶层间距 (basal

spacing)，结果表明含水率超过 30% 时形成 3 层水分子厚度吸附水，并且在恒体积条件下吸附水分子厚度不超过 3 层。Holmboe 等<sup>[19]</sup>也指出压实膨润土在恒体积条件下饱和和后层间孔 (interlayer porosity) 占主导。上述研究表明，XRD 技术可以揭示膨润土湿化的晶层间水合过程，但是并不能直观地表征微观孔隙结构的演化。

近年来，核磁共振 (NMR) 技术被引入岩土工程领域，用来分析土体水分分布状态和微观孔隙结构变化<sup>[20-23]</sup>。田慧会等<sup>[20]</sup>利用 NMR 技术测试了不同类型土体的核磁信号，确定了土体吸附水含量，并分析了脱湿过程中土体微观结构的变化规律。叶万军等<sup>[21]</sup>研究了干湿循环状态下古土壤的细微观特性，揭示了颗粒接触形式的演化过程。安然等<sup>[22]</sup>利用核磁共振  $T_2$  谱分析了花岗岩残积土的孔隙特征关系，并建立了宏-微观损伤特征的量化关系。Ma 等<sup>[23]</sup>利用 NMR 和压汞技术对比分析了膨胀土干湿循环过程中的微观结构演化规律。以上研究表明，NMR 技术被广泛地用于分析土体干湿循环和湿度变化引起的水分分布变化、内部结构演化和损伤特性，从细微观层面为分析土体的宏观力学性质提供支撑。

基于此，本文以 Wyoming 膨润土为研究对象，采用蒸汽平衡法控制吸力，开发了控制吸力膨胀力仪，测量膨润土增湿至不同吸力下的膨胀力。然后，结合 XRD 和 NMR 技术分析膨润土吸湿过程中的水分分布状态变化，探究孔隙水吸附和微观结构变化对膨胀力的影响，以期为高放废物处置库建设提供有益的参考。

1 试验材料与方法

1.1 试验材料

试验所用膨润土为商用 Wyoming 膨润土，呈灰白色，试验用土的基本物性指标和矿物成分见表 1。采用 ASTM 标准<sup>[24]</sup>方法，测试发现主要的可交换阳离子  $\text{Na}^+$ 、 $\text{K}^+$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$  的浓度分别为 493，12，312，129 mmol/kg。采用非极性的  $\text{N}_2$  吸附测试外比表面积为  $34.8 \text{ m}^2/\text{g}$ ，表 1 中的总比表面积由亚甲基蓝法测定。

1.2 膨胀力测量装置

目前，常用的膨胀力测试方法主要有膨胀反压法、加压膨胀法、平衡加压法和恒体积法<sup>[3]</sup>。为实现吸力控制条件下的膨胀力测试，本研究采用恒体积法，限

表 1 试验土样的矿物成分和基本物性指标

Table 1 Mineral compositions and fundamental physical indices of test clay

相对质量 密度	液限/%	塑限/%	CEC/(mmol·kg <sup>-1</sup> )	总比表面积/(m <sup>2</sup> ·g <sup>-1</sup> )	矿物成分/%			
					蒙脱石	长石	石英	石膏
2.70	310.0	29.0	729	682.3	77	11	7	5

注：取下沉深度为 17 mm 所对应的含水率为液限。

制土体体积变化改变吸力测量膨胀力。其中, 采用刚性框架来保证湿化过程中试样的恒体积条件, 膨胀力的变化通过荷重传感器读取, 采用蒸汽平衡法为整个试验环境提供一个可控的吸力条件。

图 1 为蒸汽平衡法测量膨胀力装置的示意图, 仪器主要包括: 膨胀力仪、玻璃缸、饱和盐溶液。有关恒体积法测量膨胀力的装置的详细介绍见文献[6]。

蒸汽平衡法是将过饱和盐溶液密封于玻璃缸中提供一个稳定的湿度环境, 通过改变盐溶液类型控制吸力。表 2 中给出了 20℃时, 不同相对湿度 ( $R_H$ ) 对应的吸力值。

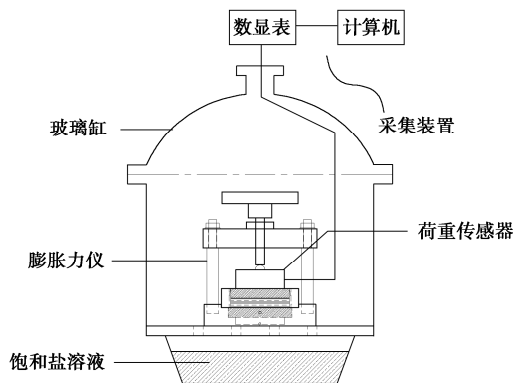


图 1 蒸汽平衡法测量膨胀力的试验装置

Fig. 1 Schematic diagram of swelling pressure test devices by vapor equilibrium technique

表 2 20℃下饱和盐溶液的相对湿度与对应吸力值

Table 2 Relative humidities and corresponding suctions of saturated salt solution at 20℃

序号	饱和盐溶液	$R_H/\%$	吸力/MPa
1	LiCl	12.0	286.3
2	CH <sub>3</sub> COOK	23.1	197.9
3	MgCl <sub>2</sub> ·6H <sub>2</sub> O	33.1	149.3
4	K <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	43.2	113.3
5	NaBr	59.1	71.0
6	NaCl	75.5	37.9
7	KCl	85.1	21.8
8	Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	93.0	9.8
9	K <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	97.6	3.3

1.3 控制吸力膨胀力试验

为了获得广吸力范围的试验数据, 将过 0.5 mm 筛粉末样在 105℃下烘干后放入保鲜袋冷却备用。根据控制的干密度计算所需干土质量, 利用压样模具与万能试验机, 将土样一次性压入不锈钢环刀中间位置, 制成试样。由于制样过程存在一定的吸湿, 试样制备完成后, 在 105℃下烘干测得含水率为 0.84%。本试验采用的干密度为 1.50, 1.60, 1.70 g/cm<sup>3</sup>, 试样高度为 10 mm, 直径为 50 mm。

采用蒸汽平衡法控制吸力, 试验选取 8 种  $R_H$  环境 (序号 2~9), 试验仪器如图 1 所示。具体的操作步骤如下: ①配制过饱和的 CH<sub>3</sub>COOK 溶液装入玻璃

缸中控制  $R_H$ ; ②将上述压制好的试样上下各放一张滤纸, 用两块直径为 50 mm, 厚度为 10 mm 的干透水石上下夹住试样, 放入刚性框架中; ③将压力传感器水平放置在透水石上方, 并调至居中, 旋钮与压力传感器对准接触; ④将装入试样后的膨胀力仪放入保湿缸中开始试验, 并记录试验数值; ⑤待膨胀力稳定后, 逐级按表 1 中的湿度值更换过饱和盐溶液, 测试不同  $R_H$  下的膨胀力。

为了保证传感器与旋钮接触, 稍微旋动旋钮, 使数显仪表的读数增加至一定值, 如 20 N (约为 10.2 kPa)。每级  $R_H$  下的稳定标准为数显仪表在 7 d 内读数变化不超过显示值的 1%, 所有  $R_H$  下的试验完成之后拆除试样。另外, 在测试过程中, 通过刚性框架刚度与荷重传感器数值的关系校正试样的干密度, 3 个干密度试样试验过程中最大干密度变化约为 0.02 g/cm<sup>3</sup>。

1.4 NMR 试验

NMR 技术可以用于研究土体中的水分含量及分布特征, 是一种无损检测技术。核磁共振是指具有自旋磁矩的质子群 (例如 H<sup>+</sup>) 在均匀磁场中受到射频磁场的作用后, 宏观磁化矢量发生偏转, 当射频停止后质子群恢复到初始平衡态的过程。该过程伴随着核磁信号的衰减, 利用 CPMG (carr-purcell-meiboom-gill) 序列可以获得核磁信号随时间变化的曲线, 即 CPMG 曲线。CPMG 曲线通过傅里叶转换可以获得  $T_2$  (横向弛豫时间) 分布曲线, 曲线下方的峰面积 (即核磁信号, 无量纲) 代表对应  $T_2$  时间范围内的含水率。同时, 若假定土中孔隙形状为圆柱形,  $T_2$  时间与孔隙半径  $r$  的关系可以表示为<sup>[20]</sup>

$$\frac{1}{T_2} \approx \rho_2 \frac{2}{r}, \tag{1}$$

式中,  $\rho_2$  为横向弛豫率, 与土颗粒表面的物理性质相关。式 (1) 表明  $T_2$  时间与孔隙半径正相关, 基于此, 当试样饱和时孔隙中充满水,  $T_2$  分布曲线可以表征土体中的孔隙结构分布特征。

本试验采用苏州纽迈公司研制的低场核磁共振分析仪, 型号为 MacroMR12-110H-1。其永久磁体磁场强度为 0.2 T (特斯拉), 为了保证主磁场的均匀性与稳定性, 磁体温度维持在 32±0.01℃, 可测试样最大尺寸为  $\phi 150 \text{ mm} \times H100 \text{ mm}$ 。

采用 1.3 节同样的方法制备干密度为 1.50, 1.70 g/cm<sup>3</sup> 的试样, 这里使用聚四氟乙烯环刀代替普通的不锈钢环刀, 以消除铁元素对核磁信号的干扰。环刀的内径和外径分别为 39.1, 50.0 mm, 高度为 20 mm。试样的高度为 10 mm, 并将试样压制在环刀中间位置。压制好的试样装入恒体积框架后, 放入 9 种  $R_H$  (表 2) 的保湿缸中, 聚四氟乙烯环刀外套不锈钢环, 防止压

力过大产生侧向膨胀。同时,称取 10 g 干燥粉末样装入玻璃蒸发皿,并放入保湿缸中。

为了保证吸湿完成,将试样放置在保湿缸中 2 个月以上,保证间隔 3 d 质量变化不超过 0.005 g。吸湿完成后,将试样从恒体积框架中拆出,迅速用保鲜膜密封包装后装入聚四氟乙烯盒中,放入核磁共振仪,采用 CPMG 序列获取  $T_2$  时间分布曲线。测试完核磁信号后,试样在 105℃ 下烘 24 h,测量试样含水率。

### 1.5 XRD 试验

XRD 试验是确定黏土矿物成分最常用的技术,其广泛地用于鉴定晶体矿物成分和测定组构定向度等方面,但是不能鉴别非晶质物质。波长与衍射角的关系可以通过布拉格 (Bragg) 方程计算:

$$n\lambda = 2d \sin \theta \quad (2)$$

式中:  $n$  为波长的倍数;  $\lambda$  为波长 (Å);  $d$  为晶层间距 (Å);  $\theta$  为衍射角 (°)

试验采用 X 射线衍射仪的型号为 X'Pert PRO,由荷兰 PANalytical BV 公司生产。采用 Cu K $\alpha$  射线 ( $\lambda = 1.5406$  Å; 40 kV; 50 Ma),使用 0.02° 的步长,扫描角度范围为 3° ~ 15°。

通常,蒙脱石的  $d(001)$  衍射峰随含水率变化,可以表征晶层间距的变化。由前人的研究可知本文研究范围内蒙脱石的  $d(001)$  衍射峰变化对应衍射角为 3° ~ 10° [19],因此只进行了低角度的测试。这里采用粉晶制样法制样用于测试,试样为 1.4 节中的不同  $R_H$  下吸湿后的粉末样。

## 2 试验结果与分析

### 2.1 吸湿过程中的膨胀力演化特征

图 2 为不同干密度试样的膨胀力随  $R_H$  变化的时程曲线。由图 2 可知,膨润土逐级吸湿,当  $R_H$  小于 85.1% 时,在每级湿度下,不同干密度的试样,膨胀力增加至稳定值后略有降低;当  $R_H$  超过 85.1% 后,干密度为 1.50, 1.60 g/cm<sup>3</sup> 的试样膨胀力先稍稍增加后降低至稳定值,而干密度为 1.70 g/cm<sup>3</sup> 的试样在  $R_H$  为 93.0% 时膨胀力降低,当  $R_H$  增加到 97.6% 后膨胀力增加。张云龙等 [25] 研究钠基膨润土的水合过程表明,当  $R_H$  在 15.0% ~ 40.0% 时,为层间阳离子水合,当  $R_H$  在 40.0% ~ 98.0% 时,为晶层内外表面水合,形成多层吸附。在本文控制  $R_H$  下,当  $R_H$  小于 85.1% 时,水分首先被层间孔隙吸附,试样吸水晶层间排斥力增加导致膨胀力增加。同时,在每级湿度下,随着含水率逐渐增加,可能是由于试样刚度降低,导致膨胀力稍稍降低直至稳定。当  $R_H$  超过 85.1% 后,膨胀力的变化与微观孔隙结构调整有关,在下文进行分析。

吸力与膨胀力的关系如图 3 所示,这里的膨胀力取值为每级试验结束时的稳定膨胀力。图 3 表明,随着吸力降低,吸力-膨胀力关系曲线总体上先线性增加后稍稍降低,峰值膨胀力对应吸力为 21.8 MPa ( $R_H$  约为 85.1%)。对于干密度为 1.50 和 1.60 g/cm<sup>3</sup> 的试样,膨胀力先增加后降低;对于干密度为 1.70 g/cm<sup>3</sup> 的试样,膨胀力先增加后降低,随后稍稍增加。

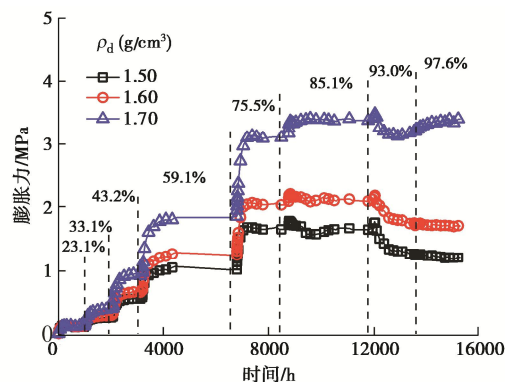


图 2 膨胀力随  $R_H$  变化的时程曲线

Fig. 2 Time-swelling pressure curves with increase of relative humidity

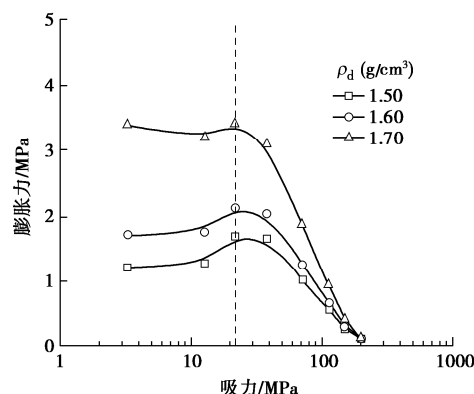


图 3 膨胀力与吸力的关系

Fig. 3 Relationship between swelling pressure and suction

压实膨润土在限制条件下吸湿产生膨胀力,主要包含两种作用:一是蒙脱石叠片的层间水化(晶格膨胀),二是颗粒表面水合形成扩散双电层(扩散双电层膨胀) [5]。膨胀力的发展过程本质上是在宏观体积保持不变的前提下,晶层间孔隙的扩张与颗粒表面扩散双层增厚受到约束产生的“楔”力的累积过程 [7]。这种“楔”力随层叠体分解和集集体结构消失而降低,随分解的层叠体继续吸水膨胀而增加,在宏观上使时间-膨胀力曲线表现为双峰形态 [26],这与本文的吸力-膨胀力曲线本质上是一致的。此外,在低干密度下,集集体间孔隙大,双峰特征更明显,而高干密度下,孔隙空间小,颗粒被约束,膨胀力降低后很快增加。

## 2.2 恒体积条件下的吸湿行为

图4为恒体积条件下不同干密度试样和粉末样的含水率随吸力变化关系,即土体持水特征曲线(SWRC)。本文中含水率为质量含水率,表示每单位质量干土的含水率。由图4可知,随着吸力降低,含水率逐渐增加,吸湿曲线大致分为3个增加段:3.3~21.8, 21.8~113.3, 113.3~286.3 MPa。可以发现,干密度对含水率的影响体现在低吸力段,当吸力大于21.8 MPa ( $R_H$ 约为85.1%)时,含水率基本不受干密度影响;当吸力低于21.8 MPa时,干密度越低含水率越大。Wang等<sup>[27]</sup>也观察到膨润土的持水性在很大程度上取决于约束条件,对于MX80膨润土,吸力高于9 MPa时吸湿曲线基本重合。以往的研究表明<sup>[28-29]</sup>,当吸力超过一定值时,膨胀土的吸湿含水率与蒙脱石矿物含量和类型有关,而不受初始干密度影响。

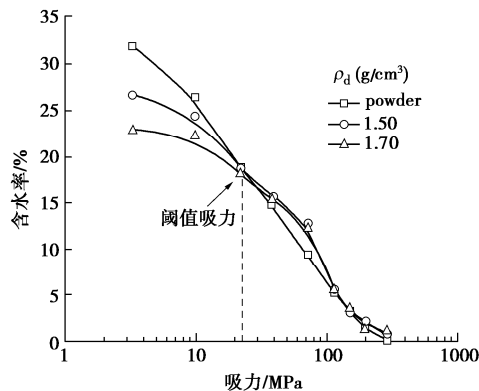


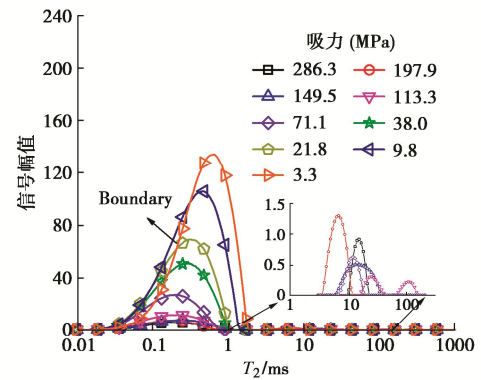
图4 含水率随吸力变化关系曲线

Fig. 4 Relationship between suction and water content

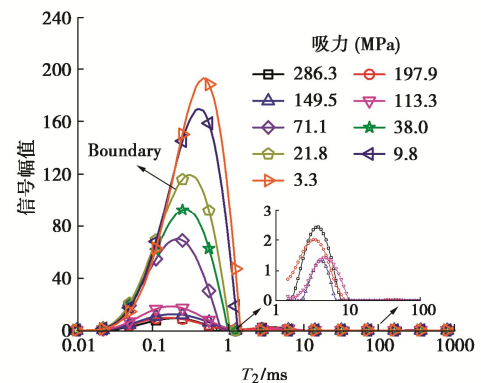
## 2.3 NMR 试验结果

图5为不同干密度试样在不同吸力下吸湿后的 $T_2$ 分布曲线。横轴为横向弛豫时间 $T_2$ ,纵轴是核磁共振信号强度,代表土体的含水率。由图5可知, $T_2$ 分布曲线包含两个峰,大峰峰值范围为0.05~2 ms,小峰峰值范围为5~100 ms;小峰峰值位置随着吸力降低而增大,大峰峰值位置规律性不强,且当吸力降低到71.1 MPa ( $R_H$ 约为59.1%)时大峰基本消失。

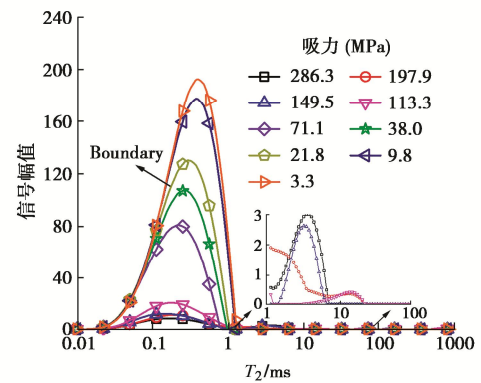
Tian等<sup>[30]</sup>测试了MX80和宁明膨润土脱湿过程中的 $T_1$ 分布曲线,结果表明饱和试样 $T_1$ 分布曲线仅包含一个峰,而随着脱湿进行非饱和试样呈现两个峰。分析认为,在脱湿过程中,大孔中的水先排出,水分子随机游动的几何曲折度增加,大孔内残留水分子与固相和气相存在高频碰撞,导致大孔内与饱和孔内残留水分子之间的扩散耦合不充分,产生双峰。对应于本文的吸湿过程,高吸力段水分在晶层间和大孔表面均存在吸附<sup>[25]</sup>,水分子的不充分扩散耦合使 $T_2$ 分布曲线表现出双峰形态。



(a) 粉末样



(b) 1.50 g/cm³



(c) 1.70 g/cm³

图5 不同干密度试样在不同吸力下的 $T_2$ 分布曲线

Fig. 5  $T_2$  distribution curves under different suctions and dry densities

图6为不同干密度试样的含水率与均一化峰面积的关系。其中,峰面积为 $T_2$ 分布曲线(图5)与横轴围成的面积,代表试样的总核磁信号,与试样的含水率正相关。为了对比,将峰面积除以干土质量进行均一化。从图6可以看出,含水率与均一化峰面积之间存在唯一的关系,不受干密度影响,这表明核磁信号可以准确地表征吸湿过程中的含水率变化。

## 2.4 XRD 试验结果

图7为不同 $R_H$ 下干燥膨润土粉末水化后的XRD谱图。可以看出,随着 $R_H$ 增加 $d(001)$ 峰值逐渐左移,对应的层间距逐渐增大。将图7中湿化过程中 $d(001)$ 随 $R_H$ 或吸力变化关系于图8中表示。由图8可知,



随着  $R_H$  增加 (吸力降低), 干燥膨润土的晶层间水分子厚度从 0 层增加到 2 层, 可以分为 3 个区域: 0~1 层 (0~23.1%)、1~2 层 (33.1%~75.5%)、2 层 (85.1%~97.6%)。膨润土在水合过程中, 晶层间距非连续性增加, 水分子逐层吸附已被 XRD 试验广泛证实<sup>[16-18]</sup>。

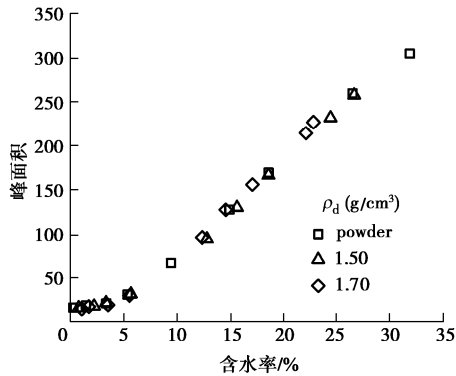


图 6 峰面积与含水率的关系

Fig. 6 Relationship between peak area and water content

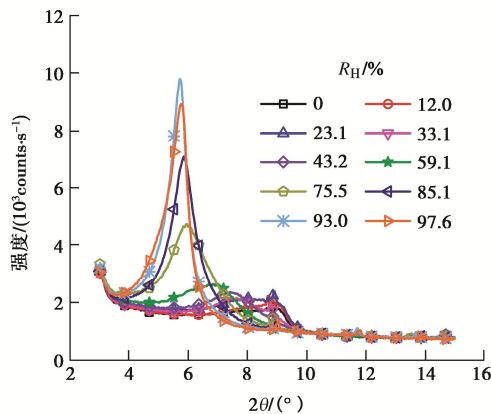


图 7 干燥膨润土粉末水化后的 XRD 图谱

Fig. 7 XRD patterns of dried bentonite powder after hydration

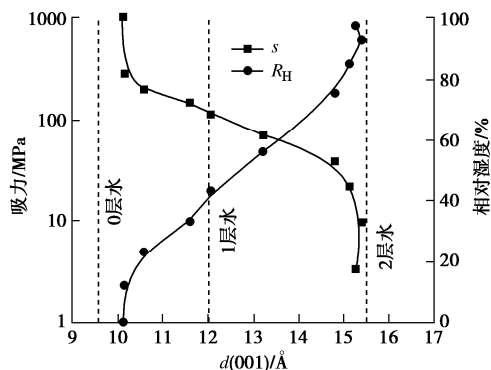


图 8 膨润土粉末吸湿过程中  $d(001)$  的变化

Fig. 8 Change of  $d(001)$  during water absorption of bentonite powder

Morodome 等<sup>[31]</sup>采用可控制温度和湿度的环境仓研究了钠基蒙脱石的层间距随湿度变化, 结果表明钠基蒙脱石的晶层间水分子厚度 0 层对应的  $R_H$  为 7.6%~21.4%, 1 层为 38.1%~70%, 2 层为 77.7%~

95.1%, 0~1 层和 1~2 层之间的转换湿度范围很小, 在控制湿度范围内未出现 3 层, 这与本文试验结果一致。

另外, 从图 4 中可以看出, 吸力-含水率关系曲线斜率是变化的, 初始段增加缓慢, 随后迅速增加, 最后增加放缓。这基本上与层间水吸附过程相一致, 分别对应的晶层间水分子厚度为: 1 层形成之前, 1~2 层的转换段, 形成 2 层之后的过程。

### 3 讨 论

#### 3.1 吸湿过程中的水分分布特征

一般来说, SWRC 可以分解为毛细作用和吸附作用区域<sup>[32]</sup>。毛细作用主要受土体孔隙中气-水界面上的表面张力控制, 在低吸力下占主导; 而吸附作用与可交换阳离子水化、矿物或晶体层间表面水化引起的界面力有关, 在高吸力下占主导。进一步可认为, 存在一个阈值吸力 (threshold suction), 低于该吸力, SWRC 主要受土体干密度和约束条件等因素的影响, 毛细效应占优势; 高于此吸力时, SWRC 仅受土体矿物特征 (如土体类型和黏粒含量) 的影响, 并且吸附效应占优势。由图 4 可知, 当吸力小于 21.8 MPa 时, 含水率开始受干密度影响, 据此可以认为吸力 21.8 MPa 是区分吸附水和毛细水的阈值吸力<sup>[23, 29]</sup>, 低于此吸力, 毛细水开始形成。

土体孔隙水的弛豫时间大小取决于孔隙水和土颗粒之间物理化学作用。由于吸附力强于毛细力, 吸附水中的氢质子比毛细水中的氢质子弛豫时间短, 即小  $T_2$  值代表吸附水。这表明可以采用  $T_2$  分布曲线区分土中吸附水和毛细水, 其中  $T_2$  分布曲线中的最大  $T_2$  值表示土孔隙中的最大饱水孔径。由图 5 可知, 吸力 21.8 MPa ( $R_H$  为 85.1%) 对应的  $T_2$  分布曲线中最大  $T_2$  值为 0.98 ms, 当  $T_2$  小于该值时, 对应的水分状态为吸附水, 可通过峰面积计算出吸附水含量。另一方面, 总含水率可以根据  $T_2$  分布曲线所围成的面积计算 (图 6)。因此, 毛细水含量可以通过从总含水率中减去吸附水含量获得。吸附水和毛细水含水率可以定义为试样中吸附水和毛细水质量与干土质量之比。Ma 等<sup>[23]</sup>给出了基于 NMR 方法计算吸附水和毛细水含水率的计算公式:

$$w_a = \frac{A_a}{A_t} \cdot w; w_c = \frac{A_c}{A_t} \cdot w \quad (3)$$

式中:  $w_a$  和  $w_c$  分别为吸附水和毛细水含水率;  $A_a$  和  $A_c$  分别为吸附水和毛细水对应峰面积;  $A_t$  为总的峰面积;  $w$  为土体含水率。

根据式 (3) 计算的吸附水和毛细水含水率随吸力变化关系如图 9 所示。可以看出, 随着吸力降低, 吸

附水先迅速增加, 低于 21.8 MPa 后增加趋缓并逐渐稳定, 而毛细水自出现后不断增加。当吸力高于 21.8 MPa 时, 不同干密度试样吸附水含水率基本一致; 而吸力低于 21.8 MPa 后, 低密度试样具有更多的吸附水。另外, 低密度试样的毛细水含水率也较高, 在整个吸力范围内, 毛细含水率不超过 5%, 干密度为 1.70 g/cm<sup>3</sup> 时几乎不存在毛细水。

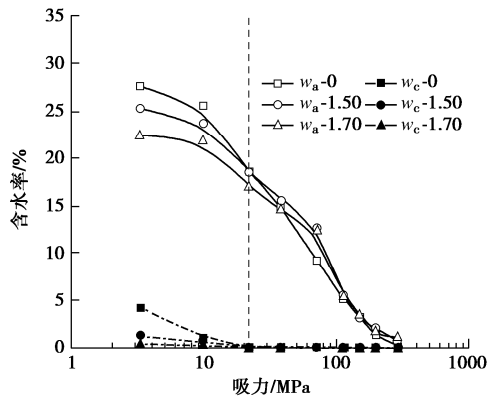


图9 吸湿过程中的吸附水和毛细水含水率

Fig. 9 Contents of adsorbed and capillary water during wetting process

由图8可知, 当吸力小于 21.8 MPa 时, XRD 结果表明晶层间水分子厚度开始变为 2 层, 这对应于 NMR 结果开始出现毛细水 (图 9), 表明部分水分开始吸附于颗粒表面。通过 XRD 和 NMR 试验结果对比分析可知, 在本文控制湿度范围内, 膨润土中主要为吸附水, 晶层间不超过 2 层水分子厚度 (XRD); 当吸力低于 21.8 MPa 后, 出现了少量毛细水, 并且在此范围内吸附水受密度影响, 表现为吸附水含水率随着密度增加而降低。原因在于随着干密度增加, 土颗粒间距变小, 在恒体积条件下颗粒表面填充吸附水的能力被限制, 导致高密度下的吸附水偏低。

### 3.2 膨胀力演化的微观特征

吸湿过程膨胀力的演化与亲水性矿物的水化和微观孔隙结构的变化有关<sup>[33-34]</sup>。Pusch<sup>[34]</sup>指出压实膨润土存在双孔隙结构, 主要包括两种类型的孔隙: 集聚体内孔隙 (层间孔隙和叠片间孔隙) 和集聚体间孔隙, 如图 10 (a) 所示。Dieudonne 等<sup>[35]</sup>认为压实膨润土的集聚体内孔隙水为吸附水, 集聚体间孔隙水为毛细水。本文研究结果表明, 当吸力高于 21.8 MPa 时, 土体中主要是以层间水为主的吸附水, 随后吸力降低, 层间水保持为 2 层水分子厚度, 并形成了少量毛细水。可以看出, 本研究采用微观分析技术为吸湿过程中孔隙水分分布提供了直观解释。基于以上分析, 在本文控制湿度条件下, 膨润土在湿化过程中的微观结构变化包括: ①层间阳离子水合, 集聚体结构保持稳定 (图

10 (b)); ②颗粒表面水合, 扩散双电层发展, 蒙脱石叠片分解, 集聚体结构逐渐消失 (图 10 (c))。

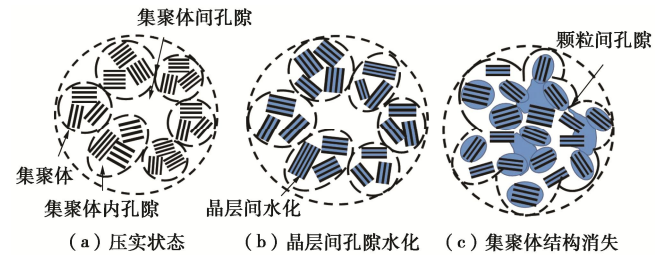


图10 吸湿过程中微观孔隙演化

Fig. 10 Pore evolution during wetting process

对于吸湿过程中膨胀力演化特征, 可以认为当  $R_H$  小于 85.1% 时, 气态水首先被集聚体内层间孔隙吸收, 孔隙水主要为吸附水, 此时集聚体结构保持稳定, 颗粒间直接接触传递作用力, 层间水合导致膨胀力线性增加; 随着湿度增加, 蒙脱石叠片分散, 颗粒表面水化, 扩散双电层发展, 并形成少量毛细水, 颗粒间形成吸附水膜, 导致颗粒滑动, 膨胀力降低。另外, 在低密度时孔隙空间更大, 导致毛细水更多, 膨胀力降低更明显。因此, 在湿度控制条件下, 膨胀力演化伴随着层间水吸附导致膨胀力迅速增加和毛细水形成填充集聚体间孔隙, 颗粒滑移, 膨胀力降低两个阶段。

## 4 结 论

(1) 在恒体积条件下膨润土增湿过程中含水率随吸力的降低而增加, 干密度的影响体现在低吸力区域, 当吸力超过 21.8 MPa 后, 不同干密度试样含水率基本一致。

(2) 通过不同干密度下的吸湿曲线, 将土中水区分为吸附水和毛细水。采用 NMR 技术分析表明, 当吸力高于 21.8 MPa 时, 随着吸力降低, 吸附水增加, 且不受密度影响; 当吸力低于 21.8 MPa 时, 随着吸力降低, 吸附水继续增加逐渐稳定, 并开始出现少量毛细水。

(3) XRD 试验结果表明, 吸湿过程中膨润土晶层间逐层吸水, 层间水分子厚度从 0 层增加至 2 层。与 NMR 结果对比发现, 形成 2 层水分子厚度之后, 孔隙间形成少量毛细水。

(4) 增湿过程中膨胀力随吸力的降低并非单调增加, 在低干密度下更明显。分析认为, 高吸力段膨胀力线性增加与晶层间水合有关, 吸力低于 21.8 MPa 后, 膨胀力降低与颗粒滑动、微观孔隙结构变化有关。

### 参考文献:

- [1] 王 驹, 徐国庆, 郑华铃, 等. 中国高放废物地质处置研究进展: 1985—2004[J]. 世界核地质科学, 2005, 22(1): 5-16.

- (WANG Ju, XU Guoqing, ZHENG Hualing, et al. Geological disposal of high level radioactive waste in China: progress during 1985-2004[J]. World Nuclear Geoscience, 2005, **22**(1): 5-16. (in Chinese))
- [2] 陈正汉, 秦冰. 缓冲/回填材料的热-水-力耦合特性及其应用[M]. 北京: 科学出版社, 2017. (CHEN Zhenghan, QIN Bing. Thermal-Water-Mechanical Coupling Characteristics of Buffer/Backfill Materials and its Application[M]. Beijing: Science Press, 2017. (in Chinese))
- [3] 谈云志, 胡新江, 喻波, 等. 压实红黏土的恒体积膨胀力与细观机制研究[J]. 岩土力学, 2014, **35**(3): 653-658. (TAN Yunzhi, HU Xinjiang, YU Bo, et al. Swelling pressure and mesomechanism of compacted laterite under constant volume condition[J]. Rock and Soil Mechanics, 2014, **35**(3): 653-658. (in Chinese))
- [4] 卢肇钧, 吴肖茗, 孙玉珍, 等. 膨胀力在非饱和土强度理论中的作用[J]. 岩土工程学报, 1997, **19**(5): 20-27. (LU Zhaojun, WU Xiaoming, SUN Yuzhen, et al. The role of swelling pressure in the shear strength theory of unsaturated soils[J]. Chinese Journal of Geotechnical Engineering, 1997, **19**(5): 20-27. (in Chinese))
- [5] 秦冰, 陈正汉, 刘月妙, 等. 高庙子膨润土 GMZ001 三向膨胀力特性研究[J]. 岩土工程学报, 2009, **31**(5): 756-763. (QIN Bing, CHEN Zhenghan, LIU Yuemiao, et al. Characteristics of 3D swelling pressure of GMZ001 bentonite[J]. Chinese Journal of Geotechnical Engineering, 2009, **31**(5): 756-763. (in Chinese))
- [6] 文松松, 梁维云, 陈永健, 等. 弱膨胀土的膨胀特性试验研究[J]. 工程地质学报, 2017, **25**(3): 706-714. (WEN Songsong, LIANG Weiyun, CHEN Yongjian, et al. Experimental study of swelling characteristics of weak expansive soil[J]. Journal of Engineering Geology, 2017, **25**(3): 706-714. (in Chinese))
- [7] 丁振洲, 郑颖人, 李利晟. 膨胀力变化规律试验研究[J]. 岩土力学, 2007, **28**(7): 1328-1332. (DING Zhenzhou, ZHENG Yingren, LI Lisheng. Trial study on variation regularity of swelling force[J]. Rock and Soil Mechanics, 2007, **28**(7): 1328-1332. (in Chinese))
- [8] 何芳婵, 李宗坤. 南水北调南阳段弱膨胀土增湿膨胀与力学特性试验研究[J]. 岩土力学, 2013, **34**(增刊 2): 190-194, 203. (HE Fangchan, LI Zongkun. Experimental study of wetting expansibility and mechanical properties of weak expansive soil in Nanyang section of South-to-North Water Diversion Project[J]. Rock and Soil Mechanics, 2013, **34**(S2): 190-194, 203. (in Chinese))
- [9] LLORET A, VILLAR M V, SÁNCHEZ M, et al. Mechanical behaviour of heavily compacted bentonite under high suction changes[J]. Géotechnique, 2003, **53**(1): 27-40.
- [10] ROMERO E, GENS A, LLORET A. Suction effects on a compacted clay under non-isothermal conditions[J]. Géotechnique, 2003, **53**(1): 65-81.
- [11] AGUS S S, ARIFIN Y F, TRIPATHY S, et al. Swelling pressure-suction relationship of heavily compacted bentonite-sand mixtures[J]. Acta Geotechnica, 2013, **8**(2): 155-165.
- [12] SCHANZ T, AL-BADRAN Y. Swelling pressure characteristics of compacted Chinese Gaomiaozi bentonite GMZ01[J]. Soils and Foundations, 2014, **54**(4): 748-759.
- [13] YIGZAW Z G, CUISINIER O, MASSAT L, et al. Role of different suction components on swelling behavior of compacted bentonites[J]. Applied Clay Science, 2016, **120**: 81-90.
- [14] 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.
- [15] DELAGE P, MARCIAL D, CUI Y J, et al. Ageing effects in a compacted bentonite: a microstructure approach[J]. Géotechnique, 2006, **56**(5): 291-304.
- [16] SAIYOURI N, TESSIER D, HICHER P Y. Experimental study of swelling in unsaturated compacted clays[J]. Clay Minerals, 2004, **39**(4): 469-479.
- [17] LIKOS W J, WAYLLACE A. Porosity evolution of free and confined bentonites during interlayer hydration[J]. Clays and Clay Minerals, 2010, **58**(3): 399-414.
- [18] VILLAR M V, GÓMEZ-ESPINA R, GUTIÉRREZ-NEBOT L. Basal spacings of smectite in compacted bentonite[J]. Applied Clay Science, 2012, **65/66**: 95-105.
- [19] HOLMBOE M, WOLD S, JONSSON M. Porosity investigation of compacted bentonite using XRD profile modeling[J]. Journal of Contaminant Hydrology, 2012, **128**(1/2/3/4): 19-32.
- [20] 田慧会, 韦昌富. 基于核磁共振技术的土体吸附水含量测试与分析[J]. 中国科学: 技术科学, 2014, **44**(3): 295-305. (TIAN Huihui, WEI Changfu. A NMR-based testing and analysis of adsorbed water content[J]. Scientia Sinica (Technologica), 2014, **44**(3): 295-305. (in Chinese))
- [21] 叶万军, 吴云涛, 杨更社, 等. 干湿循环作用下古土壤细观结构及宏观力学性能变化规律研究[J]. 岩石力学与工



- 程学报, 2019, **38**(10): 2126-2137. (YE Wanjun, WU Yuntao, YANG Gengshe, et al. Study on microstructure and macro-mechanical properties of paleosol under dry-wet cycles[J]. Chinese Journal of Rock Mechanics and Engineering, 2019, **38**(10): 2126-2137. (in Chinese))
- [22] 安然, 孔令伟, 黎澄生, 等. 炎热多雨气候下花岗岩残积土的强度衰减与微结构损伤规律[J]. 岩石力学与工程学报, 2020, **39**(9): 1902-1911. (AN Ran, KONG Lingwei, LI Chengsheng, et al. Strength attenuation and microstructure damage of granite residual soils under hot and rainy weather[J]. Chinese Journal of Rock Mechanics and Engineering, 2020, **39**(9): 1902-1911. (in Chinese))
- [23] MA T T, WEI C F, YAO C Q, et al. Microstructural evolution of expansive clay during drying-wetting cycle[J]. Acta Geotechnica, 2020, **15**(8): 2355-2366.
- [24] ASTM. Standard Test Method for Measuring the Exchange Complex and Cation Exchange Capacity of Inorganic Fine-Grained Soils[S]. ASTM D7503-10, 2010.
- [25] 张云龙, 项伟, 黄伟, 等. 钠基蒙脱土水合演化机制[J]. 岩土力学, 2019, **40**(11): 4391-4400. (ZHANG Yunlong, XIANG Wei, HUANG Wei, et al. Hydration evolution mechanism of sodium montmorillonite[J]. Rock and Soil Mechanics, 2019, **40**(11): 4391-4400. (in Chinese))
- [26] 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 Weimin, LIU Zhangrong, CUI Yujun, 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))
- [27] 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.
- [28] SALAGER S, NUTH M, FERRARI A, et al. Investigation into water retention behaviour of deformable soils[J]. Canadian Geotechnical Journal, 2013, **50**(2): 200-208.
- [29] LIANG W Y, YAN R T, XU Y F, et al. Swelling pressure of compacted expansive soil over a wide suction range[J]. Applied Clay Science, 2021, **203**: 106018.
- [30] TIAN H H, WEI C F. Characterization and quantification of pore water in clays during drying process with low-field NMR[J]. Water Resources Research, 2020, **56**(10): e2020WR027537.
- [31] MORODOME S, KAWAMURA K. Swelling behavior of Na- and Ca-montmorillonite up to 150 °C by *in situ* X-Ray diffraction experiments[J]. Clays and Clay Minerals, 2009, **57**(2): 150-160.
- [32] LU N. Generalized soil water retention equation for adsorption and capillarity[J]. Journal of Geotechnical and Geoenvironmental Engineering, 2016, **142**(10): 04016051.
- [33] 陈正汉. 非饱和土与特殊土力学: 理论创新、科研方法及治学感悟[M]. 北京: 科学出版社, 2021. (CHEN Zhenghan. Unsaturated Soil and Special Soil Mechanics: Theoretical Innovation, Scientific Research Methods and Research Insights[M]. Beijing: Science Press, 2021. (in Chinese))
- [34] PUSCH R. Mineral-water interactions and their influence on the physical behavior of highly compacted Na bentonite[J]. Canadian Geotechnical Journal, 1982, **19**(3): 381-387.
- [35] DIEUDONNÉ A, VECCHIA G D, CHARLIER R. A water retention model for compacted bentonites[J]. Canadian Geotechnical Journal, 2017, **54**(7): 915-925.