

DOI: 10.11779/CJGE20231186

不同级配 GMZ 膨润土颗粒混合物的热传导特性研究

张 召^{1,2}, 叶为民^{*1}, 李昱宛^{1,3}, 贺 勇^{1,2}, 王 琼¹, 陈永贵¹

(1. 同济大学岩土及地下工程教育部重点实验室, 上海 200092; 2. 中南大学地球科学与信息物理学院, 湖南 长沙 410083;
3. 中船勘察设计研究院有限公司, 上海 200063)

摘要: 作为高放废物深地质处置库施工接缝的回填材料, 膨润土颗粒混合物导热性能对处置库安全评价至关重要。以中国深地质处置库首选缓冲/回填材料高庙子(GMZ)膨润土为对象, 开展了水化过程中、自由填充和给定干密度条件下不同级配膨润土颗粒混合物试样的导热性能试验。结果表明, 对于自由填充情况的颗粒混合物, 导热系数随粒径的增加呈先增加后降低变化, 而给定填充密度的混合物导热系数随粒径的增加单调降低; 连续水化过程中, 不同级配混合物导热系数的时程曲线均可分为快速增长段和稳定段, 其发展趋势与稳定时间受颗粒组成影响; 膨润土颗粒水化膨胀充填粒间孔隙, 浸润峰由上、下端不断向中部发展, 混合物由颗粒型结构逐渐向连续均匀型结构发展; 接近饱和状态后, 颗粒混合物和压实膨润土的导热系数随干密度的发展规律具有一致性。

关键词: 深地质处置; 膨润土颗粒; 导热系数; 粒径级配

中图分类号: TU443 文献标识码: A 文章编号: 1000-4548(2025)07-1527-09

作者简介: 张 召(1992—), 男, 博士(后), 讲师, 主要从事非饱和土力学与环境工程地质方面的研究工作。E-mail: zhang_zhao@csu.edu.cn。

Thermal conductivity of GMZ bentonite pellet mixtures with different grain-size distributions

ZHANG Zhao^{1,2}, YE Weimin¹, LI Yuwan^{1,3}, HE Yong^{1,2}, WANG Qiong¹, CHEN Yonggui¹

(1. Key Laboratory of Geotechnical and Underground Engineering of the Ministry of Education, Tongji University, Shanghai 200092, China; 2. School of Geosciences and Info-Physics, Central South University, Changsha 410083, China; 3. CSSN Institute of the Engineering Investigation & Design Co., Ltd, Shanghai 200063, China)

Abstract: The bentonite pellet mixture has been proposed as a candidate backfilling material for technological gaps in deep geological repositories for disposal of high-level radioactive waste. Its thermal conductivity plays an important role in the safety assessment of the repository. In this study, a series of thermal conductivity tests are conducted on the GMZ bentonite pellet mixtures with different grain-size distributions. The results demonstrate that as the pellet size increases, the thermal conductivity of the mixtures firstly increases and then decreases for the specimens freely filled. However, the thermal conductivity monotonically decreases with the increase of the pellet size for the specimens packed at a given dry density. During the hydration process, the time-history curves of thermal conductivity for the pellet mixtures with different grain-size distributions can be approximately divided into a rapidly increasing stage and a stable stage. Meanwhile, the evolution and the stable time of thermal conductivity are both influenced by the particle composition. The bentonite pellets are swelled to fill the inter-pellet pores upon hydration, and the infiltration frontier gradually moves from the top/bottom part to the middle one, which is accompanied by a gradually structural transformation from a granular structure into a continuously homogeneous one. After approaching to the saturated state, the relationship between the thermal conductivity and the dry density for the bentonite pellet mixtures shows a good consistency to that of the compacted bentonite blocks.

Key words: deep geological disposal; bentonite pellet; thermal conductivity; grain-size distribution

基金项目: 国家重点研发计划项目(2019YFC1509900); 国家自然科学基金项目(42207227); 湖南省自然科学基金项目(2022JJ40586) This work was supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant No.2019YFC1509900); the National Natural Science Foundation of China (Grant No.42207227); the Natural Science Foundation of Hunan Province (Grant No.2022JJ40586).

收稿日期(Received): 2023-12-04 修回日期(Revised): 2024-11-05 接受日期(Accepted): 2024-11-19 网络出版日期(Online): 2024-11-20

*通信作者 (E-mail: ye_tju@tongji.edu.cn)

0 引言

深地质处置是处理高水平放射性核废物(简称“高放废物”)最为科学可行的方法^[1]。坚硬岩层中的深地质处置库通常采用废物罐、工程屏障和围岩等多重屏障系统来阻滞核素的迁移与泄漏。根据处置库屏障系统的概念设计,缓冲材料被填充在废物罐与围岩之间,发挥着维护废物罐稳定、传导核素衰变热和延缓地下水入渗等多重作用^[2]。大量研究证实,压实膨润土或膨润土基材料具有高膨胀性、低渗透性及强吸附性等特点,被公认为是最理想的缓冲屏障材料^[3]。根据多个国家深地质处置库(如中国、比利时、芬兰、日本等)的工程屏障概念设计,目前大多采用压实膨润土块体和高密度膨润土颗粒相结合的形式,即采用压实块体作为主体材料,砌置回填废物罐与围岩之间的空隙;再利用膨润土颗粒作为填料,填充包括膨润土块体与废物罐之间、块体与块体之间、以及块体与围岩之间等缝隙^[4-6]。研究表明,处置库长期运营过程中,库内高放废物将持续衰变并释放大量衰变热^[7],缓冲材料的导热性能研究对于处置库安全评价具有极其重要的意义。按照国际原子能机构(International Atomic Energy Agency, IAEA)要求,处置库缓冲材料的导热系数需满足 $\lambda > 0.8 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ 。

近年来,国内外学者针对不同种类的膨润土材料开展了大量导热性能试验研究。例如, Tang 等^[8]采用热线法研究了压实 MX80 膨润土的热传导特性,结果表明,土体导热系数随干密度和含水率的增加而增大。Lee 等^[9]分别采用热常数分析仪 TPS 500 s 和 QTM 500,分析了干密度、含水率、温度等因素对压实 Kyeongju 膨润土导热系数的影响。国内众多学者以中国高庙子(GMZ)膨润土为对象,探讨了干密度、饱和度、化学溶液以及温度等对压实膨润土块体导热系数的影响^[10-12]。同时,结合颗粒型膨润土回填材料研究,学者们也开始关注膨润土颗粒混合物的导热性能。Kim 等^[4]分别开展了单一粒组和混合粒组下 MX80 膨润土颗粒混合物的导热特性试验,发现随着细粒组的加入,颗粒混合物的导热系数显著升高。张虎元等^[13]采用 Hot Disk TPS 2500 s 型热常数分析仪,研究了 GMZ 膨润土颗粒-压实块体组合体的导热性能,结果表明,组合体的导热系数随颗粒填充干密度的增大而增加。Kivikoski 等^[14]采用 Hot Box 方法研究了完全干燥和非饱和状态下 MX80 膨润土颗粒混合物的导热性能,发现含水率增加,混合物导热性能提高。Xu 等^[15]也发现,膨润土颗粒混合物的导热性能随干密度和含水率的增大而增强。

目前,处置库条件下,膨润土颗粒充填方法主要包括带式输送法、螺旋输送法、气动输送法及人工填充法等。其中,在带式输送和螺旋输送过程中,膨润土颗粒主要以自由下落式充填目标区域。但颗粒充填过程中,粗粒组易沿堆积面向下滚落,导致填充区出现颗粒离析现象,即下部区域粗颗粒含量较高,而上部区域细颗粒含量较高^[16]。颗粒组成上的差异将导致混合物内部孔隙尺寸分布和颗粒接触点数量差别,进而影响土体的热传输路径和传热能力的变化。同时,在处置库建设与运营过程中,随着围岩裂隙地下水入渗,粒间孔隙逐渐被水充填,膨润土颗粒水化膨胀改变粒间接触形式和孔隙分布特征,也将导致颗粒混合物的导热性能发生变化^[5, 7]。因此,水化过程中颗粒型膨润土材料的导热性能受颗粒粒径组成和孔隙结构演化的共同影响。然而,现有研究大多局限于粒径级配、含水率等单一影响因素下膨润土颗粒混合物的热传导特性,很少涉及连续水化过程中混合物导热性能,且关于颗粒级配和水化过程共同影响下混合物导热性能的演化规律及其机理尚不明晰。

以中国内蒙古高庙子(GMZ)膨润土颗粒混合物为对象,研制了一套可测定连续水化过程中土体导热系数的试验装置,测取了自由填充与恒定填充密度情况下、连续水化过程中不同级配膨润土颗粒混合物的导热系数,结合水化过程中混合物内部结构演化特征,分析获取了粒径级配对混合物导热性能的影响。

1 试验材料

1.1 膨润土基本性质

本文采用的试验材料为中国高放废物深地质处置库首选缓冲回填材料——GMZ 膨润土。该膨润土产自内蒙古兴和县高庙子矿床 III 矿层,其基本性质见表 1。表中数据表明,本次试验用 GMZ 膨润土属于品质优良的天然钠基膨润土,蒙脱石含量超过 75%。

表 1 GMZ 膨润土的基本性质^[17]

Table 1 Basic properties of GMZ bentonite^[17]

指标	数值
相对质量密度 G_s	2.66
pH	8.68~9.86
液限/%	276
塑限/%	37
总比表面积/($\text{m}^2\cdot\text{g}^{-1}$)	597
阳离子交换容量/($\text{mmol}\cdot(100\text{g})^{-1}$)	77.3
主要交换阳离子/($\text{mmol}\cdot(100\text{g})^{-1}$)	$\text{Na}^+(43.36), \text{Ca}^{2+}(29.14), \text{Mg}^{2+}(12.33), \text{K}^+(2.51)$
主要矿物含量百分比	蒙脱石(75.4%), 石英(11.7%), 长石(4.3%)

1.2 膨润土颗粒制备

本文采用压实块体破碎法制备高密度膨润土颗粒。制备过程如下:首先,采用电子万能试验机将吸力控制平衡后的膨润土粉末(平衡吸力为113 MPa)静力压制成圆柱形膨润土块体试样(目标尺寸直径50 mm×高度30 mm,干密度1.95 g/cm³),压实速率为0.3 mm/min。待达到目标位移后,保持最大压力2 h,确保试样干密度分布均匀;随后,以0.3 mm/min速率卸载,再用活塞将压实块体试样推出金属环;随后,采用颚式破碎机破碎压实块体,并将其筛分成7个粒组(图1);最后,将制备的膨润土颗粒存放于盛有饱和K₂CO₃溶液的密封容器中进行吸力控制,环境温度设置为20°C,目标吸力为113 MPa。

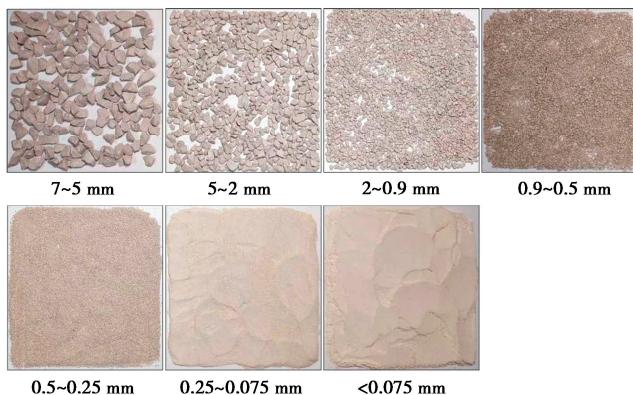


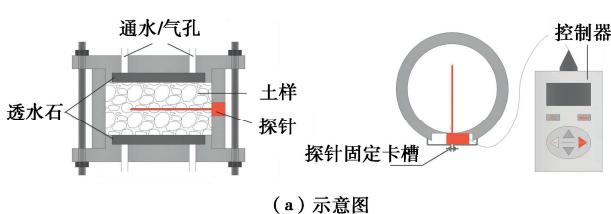
图1 不同粒组的膨润土颗粒

Fig. 1 Bentonite pellets with different size groups

2 试验方法

2.1 试验仪器

自主研制的可连续测定水化过程中土样导热系数的热传导测试装置如图2所示。其中,盛样腔室包含试样环、顶盖、底座、透水石、螺杆和螺帽等部件。试样环内径120 mm,高度40 mm,顶盖和底座内分别嵌有透水石。装置上、下端通过螺杆和螺帽固定以保证试样处于恒体积状态。环壁设有探针插孔和固定卡槽,孔径为2.5 mm。试验采用探针式热特性分析仪KD2 Pro测定土体的导热系数。探针型号为TR-1型,针长100 mm,直径2.4 mm,量程0.02~2.00 W/(m·K),测量精度±5%。



(a) 示意图



(b) 实物图

图2 热传导测试装置图

Fig. 2 Test devices for thermal conductivity

为测定水化过程中膨润土颗粒混合物的导热系数,将试样腔室与水化循环装置相连接。其中,水化装置由蠕动泵、滴定管和导液管等组成,如图3所示。导液管分别与试样上、下端的进液口和出液口相连,形成单向闭环导液通道。设置蠕动泵以恒定流速逆时针循环蒸馏水,实现土样上、下端面的同步水化。为消除试验过程中滴定管中水分的蒸发量,试验采用滴定管①作为参照组,定期记录管中水量的变化(见图3)。滴定管②用于开展试验研究,根据滴定管②中水量的变化,计算土样内部的入渗量。

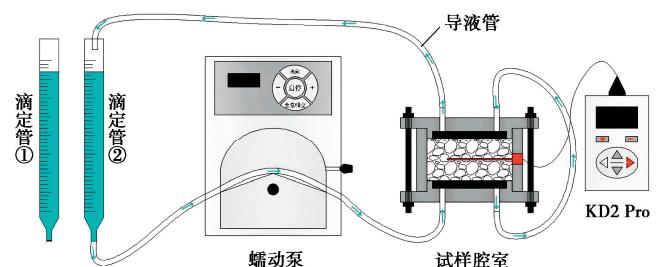


图3 水化试验装置示意图

Fig. 3 Schematic view of hydration test devices

2.2 试验步骤

(1) 不同充填方式下颗粒混合物的导热性能试验

本文分别设计了自由填充和恒定密度填充两种工况试验。①自由填充试样试验。首先,根据级配曲线称量目标质量的膨润土颗粒,并将其搅拌均匀,再逐勺填入试样腔室内;待颗粒混合物填满后,采用土工刀将试样腔室上端表面刮平,安装顶盖、旋紧螺帽;随后,插入探针,设置KD2 Pro控制器,测定试样导热系数,每个试样分别测量3次,取测量结果的平均值作为导热系数测量值;最后,取出试样并测定其质量,计算试样填充干密度。②恒定密度填充试样试验。根据自由填充试样试验中,混合物的填充干密度测量结果,选取 $\rho_d=1.07 \text{ g/cm}^3$ 作为目标干密度,获取不同粒径级配条件下颗粒混合物的导热系数及其变化规律。首先,根据土样目标级配曲线,计算不同粒组下膨润土颗粒的目标质量,称取膨润土颗粒并将其逐勺填入试样腔室内,以确保试样内颗粒分布均匀。随后,

采用“轻微拍打”的方式促使颗粒充填局部“空洞”，并通过静态压实方法控制土样达到目标填充干密度。最后，向土样内插入探针，测定试样的导热系数。导热系数测量方法同上，在此不再赘述。

表 2 分别列出了自由填充和恒定填充密度情况下、不同级配颗粒混合物的试验方案。

表 2 不同填充方式情况下不同级配颗粒导热试验方案

Table 2 Thermal conductivity test programs of bentonite pellets with different grain-size distribution under different filling methods

粒组/mm	自由填充		恒定填充密度	
	编号	$\rho_d/(g\cdot cm^{-3})$	编号	$\rho_d/(g\cdot cm^{-3})$
< 0.075	F0.075	0.77	C0.075	1.07
0.075~0.25	F0.25	0.94	C0.25	1.07
0.25~0.5	F0.5	0.95	C0.5	1.07
0.5~0.9	F0.9	0.98	C0.9	1.07
0.9~2	F2	1.01	C2	1.07
2~5	F5	1.02	C5	1.07
5~7	F7	1.03	C7	1.07

(2) 水化过程中颗粒混合物导热性能试验

本次水化试验分别测定了 4 种级配下膨润土颗粒混合物的导热特性，试样编号分别为 M7、M2、F2 和 F5，见表 3。其中，试样 F2 和 F5 同表 2 中试样 F2 和 F5 相同，即试样分别由 0.9~2, 2~5 mm 的颗粒组成，并采用自由填充的方式制备而成。试样 M7 由表 2 中涉及的 7 种粒组按一定比例组合而成，其级配曲线可通过式 (1) 计算获取^[18]。根据 Zhang 等^[19]的研究结果，选取 $D_{max} = 7$ 和 $q = 0.4$ 作为试样 M7 的级配参数。试样 M2 则由试样 M7 中粒径小于 2 mm 的部分组成。

$$P_t = (D / D_{max})^q \quad (1)$$

式中： D 为颗粒粒径； P_t 为粒径小于 D 的固体颗粒质量分数； D_{max} 为颗粒混合物中最大颗粒粒径； q 为级配模量。

表 3 水化过程中不同级配颗粒导热试验方案

Table 3 Thermal conductivity tests on bentonite pellets with different grain-size distribution during hydration

粒组/mm	初始干密度	
	编号	$\rho_d/(g\cdot cm^{-3})$
< 7	M7	1.40
< 2	M2	1.24
0.9~2	F2	1.01
2~5	F5	1.02

试验过程中，定期记录滴定管②的显示数和 KD2 Pro 的测量值，获取不同水化时间下土体的累积进水量和导热系数。待试验结束后，将试样沿高度等分为上、中、下 3 层，分别在每层不同位置取样，采用蜡封法测定不同位置处土样的干密度。

3 结果分析

3.1 自由/恒定密度填充的混合物导热特性

实测不同粒组试样的导热系数和填充干密度的变化关系，如图 4 所示。结果表明，随着颗粒粒径的增大，混合物的导热系数呈现先升高后降低趋势，并在 0.25~0.5 mm 粒组情况下（试样 F0.5）达到峰值。同时，混合物的填充干密度随粒径的增加而连续升高。这一现象表明，在所涉及的粒径范围内，颗粒混合物的导热系数与干密度之间并非完全正相关的。在粒径小于 0.5 mm 区域，导热系数随干密度的增加而增加，但当粒径大于 0.5 mm 时，导热系数随干密度的增加而降低。因此，膨润土颗粒混合物的导热系数受其填充密度和颗粒粒径的共同影响。

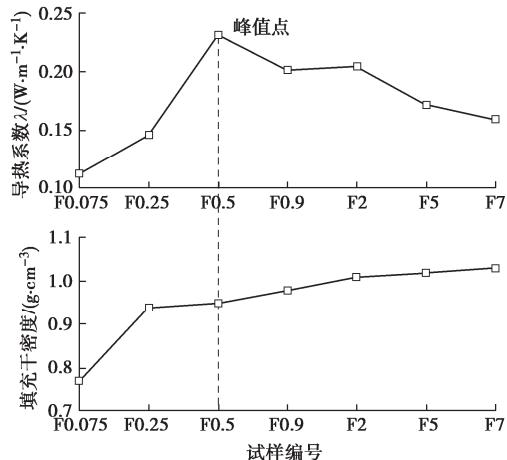


图 4 自由填充情况下干密度和导热系数随粒径变化曲线

Fig. 4 Evolution of dry density and thermal conductivity with grain size for specimens free filled

恒定填充密度情况下，导热系数随颗粒粒径的变化关系曲线，如图 5 所示。从图 5 中可以看出，随着颗粒粒径的增加，混合物的导热系数降低。其中，当粒径小于 0.9 mm 时，导热系数下降较为缓慢，而当粒径大于 0.9 mm 时，导热系数随粒径的增加显著降低，表明颗粒组成对混合物导热性能影响显著。此外，图 4 和图 5 中的试验结果对比表明，填充干密度的增加可显著提高混合物的热传导能力。如试样 F0.075，当填充干密度由 0.77 g/cm³ 升至 1.07 g/cm³ 时，导热系数由 0.11 W/(m·K) 增至 0.34 W/(m·K)。

上述试验结果表明，混合物的导热性能受干密度和颗粒粒径影响显著。实际上，粒径组成和填充干密度两种因素的影响是通过改变混合物细观层面颗粒间接触形式和骨架结构，进而引起混合物导热性能的改变。热流在颗粒型材料中的传热过程与颗粒间接触点数量、接触面积、接触紧密程度、孔隙尺寸以及孔隙

形态等因素有关。研究表明, 热流在多孔介质中的传递遵循最小热阻法则, 即热流会绕过热阻大的孔隙(如颗粒间的气充孔隙), 而优先沿着最邻近、热阻最小的基质通道流动(颗粒自身及其接触点)^[20]。在自由填充条件下, 颗粒粒径的变化将改变混合物颗粒接触点数量、粒间孔隙分布和热流传输通道弯曲度等(图 6)。对于细颗粒试样, 热传递过程涉及的颗粒接触点数量过多且传热通道弯曲度高, 导致土体导热系数较低。随着颗粒粒径尺寸的增大, 粒间接触点减少, 传热通道弯曲度降低, 颗粒自身传热效应显著, 混合物整体导热性能增强。但当颗粒粒径过大时(粗颗粒粒组), 颗粒接触点数量过少且粒间大孔隙严重限制了热流的有效传输, 导致热流传输路径有限, 导热性能降低。

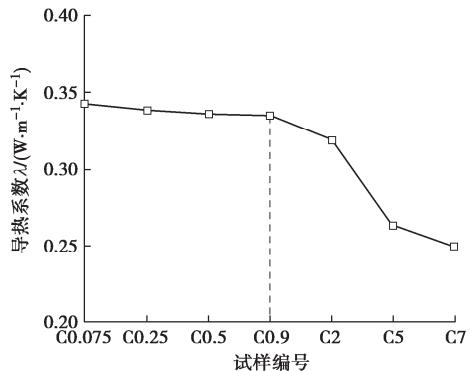


图 5 恒定填充干密度试样导热系数随粒径变化曲线
Fig. 5 Change of thermal conductivity with grain size for specimens with constant filling dry density

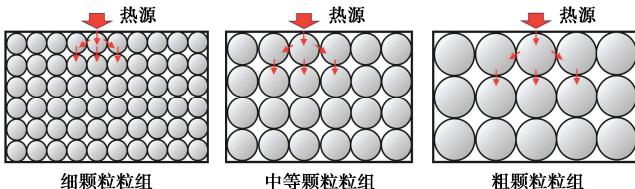


图 6 不同粒组下颗粒材料传热路径示意图

Fig. 6 Schematic diagram of heat transfer path for granular materials with different grain sizes

对于同一粒组的颗粒混合物, 随着干密度的增加, 颗粒间孔隙逐渐被压缩, 接触点数量增加且粒间接触更加紧密, 从而导致热流传输通道数增加、传输路径弯曲度降低, 热传导能力提高。在相同填充密度情况下, 随着颗粒粒径的增大, 颗粒间孔隙尺寸变大, 颗粒接触点数量减少, 热流传输通道数变少、传输路径弯曲度增大, 因此土体导热性能下降。

3.2 水化过程中膨润土颗粒混合物的导热特性

水化过程中, 实测颗粒混合物导热系数和进水量时程曲线, 如图 7 所示。水化初期, 土样的导热系数迅速增加, 在通水约 100 h 后接近稳定。与导热系数的发展趋势类似, 在初始水化阶段, 土样的进水量迅

速增长, 而当通水约 100 h 后, 进水量增长变缓, 近似呈线性增加。根据拟合结果, $t > 100$ h 时, 土体的渗透系数 $k \approx 7.45 \times 10^{-11}$ m/s。

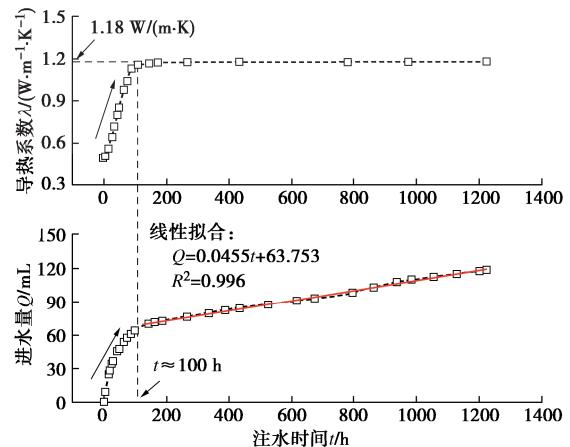


图 7 水化过程中导热系数、进水量随时间变化曲线

Fig. 7 Evolution of thermal conductivity and water inflow with time during hydration process

实测水化过程中、颗粒混合物导热系数随含水率的变化关系, 如图 8 (a) 所示。从图中可以看出, 曲线呈现明显的阶段性特征: ①阶段 I (0~18 h), 导热系数随含水率的增加缓慢增长; ②阶段 II (18~100 h), 导热系数随含水率的增加, 呈现近似线性增长的趋势; ③阶段 III (100~1230 h), 导热系数基本达到稳定。为了分析水化过程中、膨润土颗粒混合物的结构变化情况, 图 8 (b) 分别选取了曲线上 5 个状态点 (A, B, C, D 和 E) 对应的表观结构图。结果表明, 当水化 1 h 时, 蒸馏水在重力作用下沿混合物内部的粒间孔隙渗入试样内部, 形成优势渗流区, 且试样上端出现浸润层(图 8 (b) 中 A 点)。当试样由 A 点水化至 B 点时, 优势渗流区面积略有扩大, 浸润层厚度有所增加; 当达到 C 点时, 土样上、下端浸润层厚度显著增加, 中部优势渗流区明显扩大, 土样大部分区域发生水化; 待通水至 D 点时, 土样上、下浸润面基本重合, 整个试样均已水化, 仅有少量粒间孔隙存在; 待通水 724 h 后 (E 点), 粒间孔隙消失, 试样整体较为均匀。在膨润土颗粒结构演化过程方面, 水化初期 ($A \rightarrow B$), 膨润土颗粒尚未发生明显膨胀且内部孔隙结构变化不大, 仅有部分溶液沿粒间孔隙渗入土体中, 混合物的导热系数变化不显著。随着水化的进行 ($B \rightarrow C \rightarrow D$), 膨润土颗粒水化膨胀, 浸润层厚度显著增加, 混合物由颗粒型结构向连续型结构发展, 大量粒间孔隙被填充, 热流传输通道面积显著增加, 混合物热传导能力明显升高。待达到 D 点后 ($D \rightarrow E$), 混合物的粒间孔隙已被填充完毕, 孔隙结构变化不再显著, 混合物的导热性能基本不变。

实际上,水化过程中膨润土颗粒混合物导热性能增强的原因可归结为以下两点:①水化过程中,渗入的孔隙水驱替土中气体,而水的导热系数($\lambda_w=0.6 \text{ W/(m}\cdot\text{K)}$)显著高于气体导热系数($\lambda_a=0.026 \text{ W/(m}\cdot\text{K)}$),故孔隙水含量的增加将提升土体的导热性能;②从宏观土体骨架结构演化方面看,水化过程中膨润土发生晶层膨胀和双电层膨胀,层叠体水化裂解,黏土集合体膨胀软化,同时伴有粒间孔隙逐渐被充填,粒间接触力和接触程度增强、接触面积增大,颗粒接触形式逐渐由“点-点接触”向“面-面接触”发展。这一过程显著提高了固相传热通道面积和降低了传热路径弯曲度,进而导致土体的热传导能力增强。

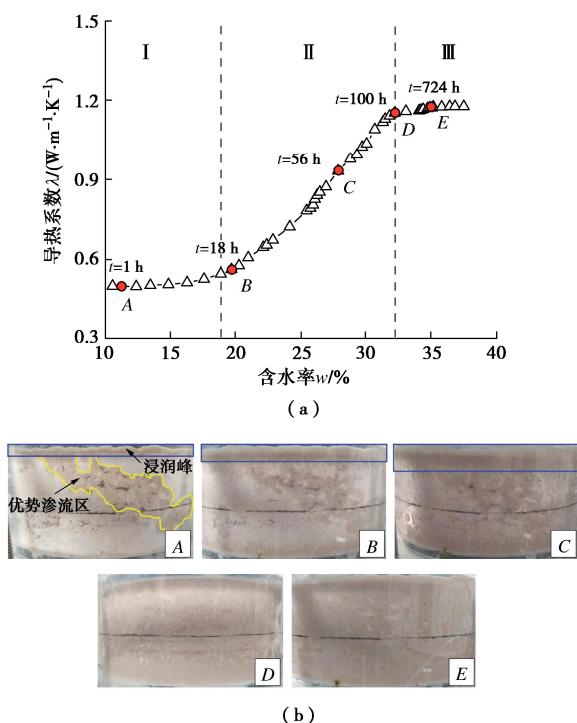


图 8 不同含水率的混合物导热系数与表观结构特征

Fig. 8 Change of thermal conductivity and apparent structure with water content for bentonite pellet mixtures

3.3 水化过程中不同级配混合物的导热特性

水化过程中,实测不同级配膨润土颗粒材料的导热系数时程曲线,如图 9 所示。从图 9 中可以看出,所有的曲线均近似呈现两段式,即快速增长段和稳定段。其中,在快速增长段,试样 M7 的时程曲线近似呈线性特征,在水化 87.6 h 后进入稳定段,导热系数变化不再显著,其最终值稳定为 $1.18 \text{ W/(m}\cdot\text{K)}$ 。试样 M2 和试样 F2 的导热系数时程曲线基本一致,表明二者的组成成分差异对其导热特性的演化影响不显著,导热系数达到稳定的时间较试样 M7 更长。对于试样 F5,尽管其初始状态下导热系数较试样 M2 和 F2 更高,但其曲线发展相对较慢且所需稳定时间更长

($t=148 \text{ h}$)。此外,从试验结果还可以发现,饱和状态下所有试样的导热系数均满足国际原子能机构的导热系数要求($\lambda>0.8 \text{ W/(m}\cdot\text{K)}$)。

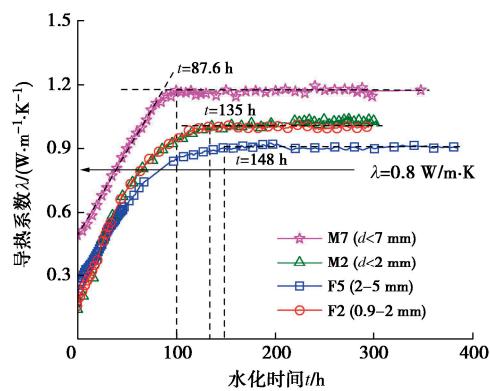


图 9 水化过程中不同级配膨润土颗粒混合物导热系数时程曲线

Fig. 9 Evolution curves of thermal conductivity for bentonite pellet mixtures with different grain-size distributions upon hydration

水化前后土样的表观结构状态和不同高度处的干密度分布情况,如图 10 所示。从试样 F5 的干密度分布图可以发现(图 10 (a)),土样上、中和下层干密度存在差异,即中层干密度最高、上层次之、下层最低,其中,上层干密度接近于试样的整体干密度。同时,同层不同位置处的干密度较为接近,表明沿试样径向干密度分布较为均匀。从图 10 (b) 可以看出,在水化 526 h 后,试样 F5 的颗粒型结构基本消失,混合物粒间孔隙基本被充填,土样结构连续且完整。但从土样的剖面图可以发现,尽管粒间孔隙基本被充填,其断面粗糙且呈锯齿状,能够清晰辨别出水化膨胀后膨润土颗粒的分布位置及其轮廓形态,由此可推测出断裂面轨迹沿粒间接触面形成。同试样 F5 相类似,其余 3 个试样的干密度分布也呈现中层干密度最高、上层次之、下层最低的特征。此外,从表观结构形态图可发现,水化 510 h 后,试样 F2 的剖面仍可观察到水化后膨润土颗粒的形态,而试样 M2 的断面更加均匀连续。

上述水化试验是通过双面通水法完成的,故试样上、下层的水化程度较为相近。水化过程中,上、下层土体优先吸水膨胀挤压中层膨润土颗粒,从而导致上、下层土体干密度降低,而中层土体干密度增加。随着水分的入渗,中部土体逐渐膨胀并反向挤压上、下层试样。从试验结果可以看出,在水化 500 h 后,颗粒材料内部干密度分布仍未达到均匀,表明土样的均一化尚未完成。同时,在近似相同水化时间后,试样 F5 的干密度分布差异性较大且断面锯齿状明显,

这主要归因于粗颗粒试样内粒间孔隙尺寸较大, 水化过程中颗粒的接触面较小, 颗粒水化膨胀和充填粒间孔隙所需时间较长。相较而言, 试样 M2 由小于 2 mm 的细颗粒组成, 颗粒数量较多且接触面积较大, 颗粒可迅速水化膨胀充填粒间孔隙, 故试样的水化程度更高, 不同高度处的干密度差异性较小、分布更加均匀。

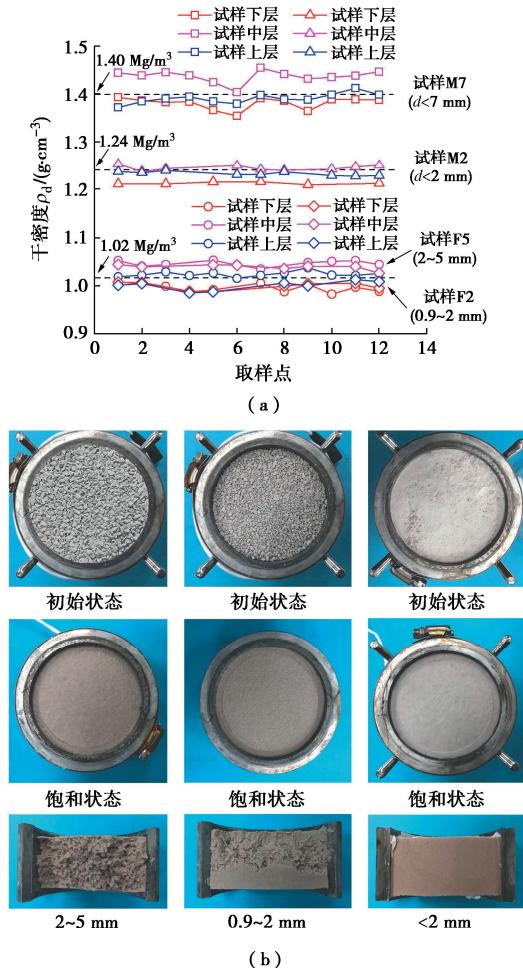


图 10 不同级配试样的表现结构特征及干密度分布

Fig. 10 Apparent structural morphologies and distribution of dry density of soil samples with different grain sizes

3.4 膨润土颗粒混合物导热系数的发展规律

根据上述图 5 中试验结果, 为了分析初始状态下颗粒粒径对颗粒混合物导热系数的影响, 图 11 绘制了恒定填充密度条件下单一粒组颗粒混合物导热系数 λ 与平均颗粒粒径 D_e 间的变化关系。其中, 各粒组下的平均颗粒粒径通过该粒组的最大粒径与最小粒径取平均值计算获取。例如, 对于试样 F7 (5~7 mm), 其平均颗粒粒径取为 6 mm。根据图中 $\lambda \sim D_e$ 发展规律可知, 导热系数随平均粒径的增大连续减小, 二者间可采用对数型函数关系予以表征 (拟合曲线见图 11), 且曲线拟合度较高 ($R^2=0.966$)。

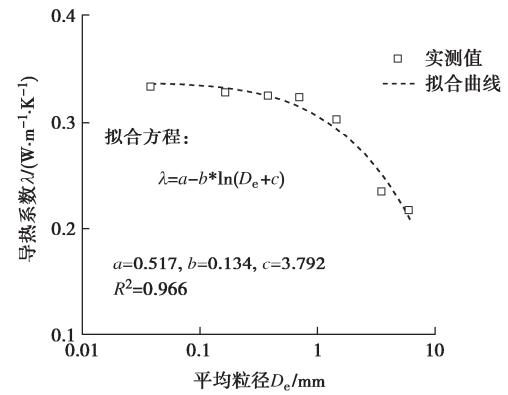


图 11 恒定填充密度下混合物导热系数与颗粒平均粒径的变化关系

Fig. 11 Relationship between thermal conductivity and average grain size at a constant packing density

如前所述, 水化过程中膨润土颗粒膨胀软化并填充粒间孔隙, 混合物逐渐由颗粒型结构向连续型结构发展。待达到饱和状态后, 颗粒混合物趋于均一化, 其内部结构与饱和压实膨润土相接近^[21]。理论上, 若水化饱和后二者的微观结构相似, 其宏观的导热性能应具有一致性。为了进一步对比分析饱和状态下颗粒混合物和压实膨润土的导热特性, 图 12 分别绘制了不同干密度情况下实测饱和 GMZ 膨润土颗粒混合物与压实块体的导热系数^[22]。饱和状态下压实膨润土材料的导热系数-干密度变化关系通常可通过 Woodside 等^[23]提出的热传导模型进行量化表征。Zhang 等^[24]通过搜集大量不同种类压实膨润土材料的导热数据, 证实了该模型在计算饱和压实膨润土导热性能的准确性。Woodside 等^[23]的热传导模型计算方法如下:

饱和两相介质 (固相和液相) 的有效导热系数可表示为

$$\lambda_{\text{eff}} = \lambda_s^{1-n} \lambda_f^n \quad (2)$$

式中: λ_{eff} 为有效导热系数; λ_s 为土体固相的导热系数; λ_f 为液相导热系数; n 为孔隙度。对于膨润土而言, 固相的导热性能主要由石英和其他矿物控制。为综合考虑不同组分对土体固相导热性能的影响, Farouki^[25]提出了土体固相导热系数计算模型:

$$\lambda_s = \lambda_q^\alpha \lambda_o^{1-\alpha} \quad (3)$$

式中: λ_q 为石英导热系数, $\lambda_q = 7.7 \text{ W}/(\text{m} \cdot \text{K})$; λ_o 为其他矿物的导热系数, 通常 λ_o 取为 $2.0 \text{ W}/(\text{m} \cdot \text{K})$ ^[8]; α 为膨润土内的石英含量。根据表 1 结果, 本文采用的 GMZ 膨润土的石英含量为 11.7%, 即 $\alpha = 0.117$ 。

模型获取的饱和膨润土导热系数-干密度理论计算曲线如图 12 所示。通过对比理论计算曲线与试验数据可知, 饱和状态下膨润土颗粒混合物与压实块体的导热系数可通过上述模型统一描述。这一现象表明, 水化饱和后, 膨润土颗粒混合物与压实膨润土块体的

导热性能具有一致性。

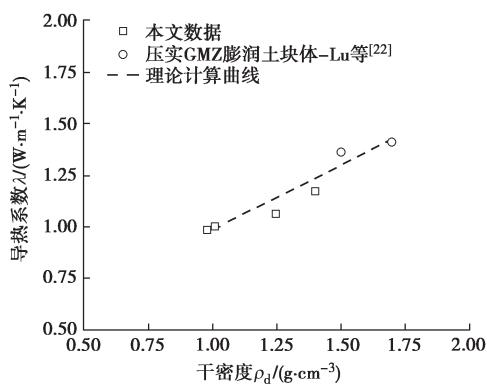


图 12 导热系数随干密度变化关系

Fig. 12 Change of thermal conductivity with dry density

4 结 论

自由填充情况下, 颗粒混合物的导热系数随粒径增加呈先增加后降低的变化趋势, 并在 0.25~0.5 mm 粒组达到峰值。导热系数与干密度间并非呈简单正相关, 而是受干密度和颗粒级配的共同影响。

恒定填充密度时, 颗粒混合物导热系数随粒径增加降低, 主要是由于颗粒粒径增大, 粒间孔隙尺寸变大和颗粒接触点数量减少, 导致热流传输通道数减少、传输路径弯曲度提高, 导热性能降低。

水化过程中, 颗粒混合物的导热系数时程曲线近似呈双线性, 包括快速增长段和稳定段。水化初期, 试样内部出现优势渗流区, 上、下端形成浸润层; 随着水化的进行, 膨润土颗粒膨胀填充粒间孔隙, 导致优势渗流区扩张、浸润层厚度增大, 热流传输通道面积增大、弯曲度降低, 导热系数显著提高; 粒间孔隙填充完毕后, 导热系数基本达到稳定。待达到饱和状态后, 颗粒混合物和压实块体的导热系数-干密度变化关系具有一致性, 可通过 Woodside 和 Messmer 热传导模型统一描述。

利益冲突声明/Conflict of Interests: 所有作者声明不存在利益冲突。All authors disclose no relevant conflict of interest.

作者贡献/Authors' Contributions: 张召和李昱宛参与实验操作和论文写作; 叶为民、陈永贵、王琼和贺勇参与论文的修改与指导。所有作者均阅读并同意最终稿件的提交。The experimental operation and manuscript writing were completed by ZHANG Zhao and LI Yuwan. YE Weimin, CHEN Yonggui, WANG Qiong, and HE Yong participated in the revision and guidance of the manuscript. All authors have read and agreed to submit the final manuscript.

参考文献:

- [1] 潘自强, 钱七虎. 中国高放废物地质处置战略研究[J]. 中国核电, 2013, 6(3): 194-196. (PAN Ziqiang, QIAN Qihu. The geological disposal of high-level radioactive waste strategy research in our country[J]. China Nuclear Power, 2013, 6(3): 194-196. (in Chinese))
- [2] YE W M, CHEN Y G, CHEN B, et al. Advances on the knowledge of the buffer/backfill properties of heavily-compacted GMZ bentonite[J]. Engineering Geology, 2010, 116(1/2): 12-20.
- [3] 刘月妙, 徐国庆, 刘淑芬, 等. 中国高放废物处置库缓冲/回填材料压实膨胀特性研究[J]. 铀矿地质, 2001, 17(1): 44-47. (LIU Yuemiao, XU Guoqing, LIU Shufen, et al. Study on compactibility and swelling property of buffer/backfill material for HLW repository[J]. Uranium Geology, 2001, 17(1): 44-47. (in Chinese))
- [4] KIM C S, MANA, 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. Nuclear Waste Management Organization, NWMO[R]. Ottawa: Nuclear Waste Management Organization, Canada, 2012.
- [5] 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.
- [6] LUTERKORT D, JOHNNESSON L E, ERISKSSON P. Buffer Design and Installation Method: Installation Report [R]. Stockholm: SKB TR-17-06, 2017.
- [7] 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.
- [8] TANG A M, CUI Y J, LE T T. A study on the thermal conductivity of compacted bentonites[J]. Applied Clay Science, 2008, 41(3/4): 181-189.
- [9] LEE J O, CHOI H, LEE J Y. Thermal conductivity of compacted bentonite as a buffer material for a high-level radioactive waste repository[J]. Annals of Nuclear Energy, 2016, 94: 848-855.
- [10] 叶为民, 王 琼, 潘 虹, 等. 高压实高岭土膨润土的热传导性能[J]. 岩土工程学报, 2010, 32(6): 821-826. (YE Weimin, WANG Qiong, PAN Hong, et al. Thermal conductivity of compacted GMZ01 bentonite[J]. Chinese

- Journal of Geotechnical Engineering, 2010, **32**(6): 821-826. (in Chinese))
- [11] 刘月妙, 蔡美峰, 王 驹. 高放废物处置库缓冲材料导热性能研究[J]. 岩石力学与工程学报, 2007, **26**(增刊 2): 3891-3896. (LIU Yuemiao, CAI Meifeng, WANG Ju. Thermal properties of buffer material for high-level radioactive waste disposal[J]. Chinese Journal of Rock Mechanics and Engineering, 2007, **26**(S2): 3891-3896. (in Chinese))
- [12] 曾召田, 梁 珍, 邵捷昇, 等. 碱-热环境下 MX80 膨润土导热性能试验研究[J]. 岩土力学, 2022, **43**(增刊 2): 155-162. (ZENG Zhaotian, LIANG Zhen, SHAO Jiesheng, et al. Experimental study on thermal conductivity of MX80 bentonite in alkali-thermal environment[J]. Rock and Soil Mechanics, 2022, **43**(S2): 155-162. (in Chinese))
- [13] 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 Huyuan, WANG Xuewen, LIU Ping, et al. Study on joint sealing and healing of buffer backfill material block[J]. Chinese Journal of Rock Mechanics and Engineering, 2016, **35**(S2): 3605-3614. (in Chinese))
- [14] KIVIKOSKI H, HEIMONEN I, HYTTINEN H P. Betonite Pellet Thermal Conductivity Techniques and Measurements Posiva[R]. Orkila: Posiva Solution Lct, 2015.
- [15] XU Y S, ZHOU X Y, SUN D A, et al. Thermal properties of GMZ bentonite pellet mixtures subjected to different temperatures for high-level radioactive waste repository[J]. Acta Geotechnica, 2022, **17**(3): 981-992.
- [16] 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.
- [17] 温志坚. 中国高放废物处置库缓冲材料物理性能[J]. 岩石力学与工程学报, 2006, **25**(4): 794-800. (WEN Zhijian. 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. (in Chinese))
- [18] ANDREASEN A H M, ANDERSEN J. Relation between grain size and interstitial space in products of unconsolidated granules [J]. Kolloid-Zeitschrift, 1930, **50**: 217-228.
- [19] 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.
- [20] 李小川, 徐友伟, 黄庠永. 大孔隙对多孔介质导热性能影响的数值分析[J]. 华北电力大学学报(自然科学版), 2012, **39**(6): 76-79. (LI Xiaochuan, XU Youwei, HUANG Xiangyong. Numerical analysis of the influence of macropore on thermal conductivity of porous media[J]. Journal of North China Electric Power University (Natural Science Edition), 2012, **39**(6): 76-79. (in Chinese))
- [21] ZHANG Z, NI X Q, WANG H, et al. Homogenization of a granular bentonite material upon saturation: an analysis based on pore structure evolutions[J]. Environmental Earth Sciences, 2023, **83**(1): 16.
- [22] LU Y, YE W M, WANG Q, et al. Investigation on anisotropic thermal conductivity of compacted GMZ bentonite[J]. Bulletin of Engineering Geology and the Environment, 2020, **79**(3): 1153-1162.
- [23] WOODSIDE W, MESSMER J H. Thermal conductivity of porous media. I. unconsolidated sands[J]. Journal of Applied Physics, 1961, **32**(9): 1688-1699.
- [24] ZHANG Z, ZHANG F, MUHAMMED R D. Effect of air volume fraction on the thermal conductivity of compacted bentonite materials[J]. Engineering Geology, 2021, **284**: 106045.
- [25] FAROUKIO. Thermal Properties of Soils[M]. Hanover, NH: US Army Corps of Engineers, Cold Regions Research and Engineering Laboratory, 1981.