

干湿循环条件下高压实膨润土的微观结构特征

叶为民^{1,2}, 万敏¹, 陈宝¹, 崔玉军³, 王驹⁴

(1. 同济大学岩土工程重点实验室, 上海 200092; 2. 教育部城市环境与可持续发展联合研究中心, 上海 200092;

3. 法国国立路桥大学, 巴黎; 4. 核工业北京地质研究院, 北京 100029)

摘要: 采用温度、吸力控制方法, 试验研究了在不同温度、不同侧限约束条件下的高压实高庙子膨润土微观结构在干湿循环作用下的变化规律。结果表明, 特定温度下、高吸力 (>5 MPa) 范围内, 干湿循环路径对无侧限、高压实膨润土集合体内孔隙与集合间孔隙的影响存在明显差异。吸湿过程中, 试样内部不同孔径的孔隙均发生了不同程度的膨胀; 脱湿过程中, 孔隙出现分化, 部分较大孔径 (>3000 nm) 的孔隙收缩, 而集合体内孔隙基本不受吸力增加的影响。相同侧限条件下, 温度对干湿循环路径对高压实膨润土微结构的影响效果具有明显的放大作用, 即温度越高、干湿循环路径对高压实膨润土微结构的影响作用越明显。

关键词: 膨润土; 核废料处置库; 微结构; 干湿循环; 温度

中图分类号: TD853.34

文献标识码: A

文章编号: 1000-4548(2011)08-1173-05

作者简介: 叶为民(1963-), 男, 博士, 教授, 博士生导师, 主要从事环境地质、非饱和土力学方面的教学与研究工作。E-mail: ye_tju@tongji.edu.cn。

Micro-structural behaviors of densely compacted GMZ01 bentonite under drying/wetting cycles

YE Wei-min^{1,2}, WAN Min¹, CHEN Bao¹, CUI Yu-jun³, WANG Ju⁴

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

United Research Center for Urban Environment and Sustainable Development, Ministry of Education, Shanghai 200092, China; 3. Ecole

Nationale des Ponts et Chaussées, Paris, France; 4. Beijing Research Institute of Uranium Geology, Beijing 100029, China)

Abstract: With temperature and suction control, the evaluation of microstructure of densely compacted GMZ01 bentonite under different constraint conditions is conducted under wetting/drying cycles. The results indicate that for high suction (>5 MPa), there is a significant difference between the effects of the drying/wetting cycles on the inter-aggregate pores and the intra-aggregate pores. Following the wetting path, all the pores with different sizes expand at different levels. While following the drying process, some inter-aggregate pores with larger size (>3000 nm) shrink, but the intra-aggregate pores almost do not change with the increase of suction. For confined GMZ01 bentonite specimen, when it hydrates to 5.1 MPa, the swelling of aggregates squeezes into the large pores, which causes the volume of inter-aggregate pores to reduce rapidly. However, the volume of the intra-aggregate pores almost unchanges. After that, when the specimen dehydrates to 103 MPa, the volume of intra-aggregate pores still unchanges. While the inter-aggregates pores differentiate, some of the lager pores (>2000 nm) shrink into smaller pores ($300\text{ nm}<D<700\text{ nm}$), which results in the decrease of the lager pores and the increase of the latter ones, but the increment is limited. For the same confining conditions, temperature significantly enhances the influence of wetting/drying circles on the microstructure of densely compacted bentonite, that is to say, the higher the temperature, the more obvious of the influence of the wetting/drying circles on the microstructure of the bentonite.

Key words: bentonite; nuclear waste repository; microstructure; wetting/drying cycles; temperature

0 引言

处置库运营过程中, 作为缓冲材料高压实膨润土各项性能(如土水特征和渗透特性等)都与膨润土独特的微观结构有关。众多学者针对高压实膨润土的微观结构

基金项目: 国家自然科学基金项目(40772180, 40802069, 41030748); 国防科工委开放基金(科工计[2007]831号); 上海市重点学科(地质工程)资助项目(B308)

收稿日期: 2010-06-18

的水化特征开展了广泛地实验研究与理论探讨^[1-7]。Pusch^[4]发现,非饱和膨胀性黏土微结构呈非均质分布,其孔隙基本可划分为晶层间孔隙、集合体内孔隙和集合体间孔隙 3 种类型。Saiyouri 等^[8]指出,集合体内层叠体随含水率变化而变化,层叠体内的晶片层数随着水化的深入而不断减少。Cui 等^[9]研究表明,侧限膨胀过程中,高压实膨润土的大孔隙减小,并在吸力接近零时消失,集合体内黏土片层分开,土的微观结构更加均匀。

国内不少学者也开展了相应的研究工作。陈宝等^[10]采用环境扫描电镜和压汞仪试验研究了高压实高庙子膨润土的微观结构特征,结果表明:不同吸力作用下,膨润土的持水特性与其微观结构之间有着密切关系。叶为民等^[6]利用压汞法(MIP)和电镜扫描法(SEM),研究了高压实 MX80 膨润土在不同吸力条件下的体积变化特征。何俊等^[11]对膨润土微观结构 SEM 观察时出现的表观孔隙率与宏观孔隙率不一致的问题进行了分析。叶为民等^[12]研究了低吸力范围、高压实高庙子膨润土的体变特征,并采用双电层理论估算了膨润土水化过程中的自由膨胀量。

值得注意的是上述研究主要集中在单一干/湿路径下的高压实膨润土的微结构变化特征。但高放废物处置库运营过程中,在气体的产生与迁移^[13]和库周围岩中的地下水渗入的多重作用下,作为缓冲材料的膨润土可能经历多次干湿循环过程所引起的、微结构层次上的反复加卸载,从而对其缓冲性能产生影响^[14]。为此,不少学者开展了干湿循环引起的土水特征滞回特性等方面的研究,但主要集中于滞回循环的土水特征关系模型的建立,如边界模型^[15-16]、内变量模型^[17]等,而对干湿循环引起微结构变化的研究几乎未见报道。

本文针对干密度为 1.7 g/cm^3 的高压实 GMZ01 膨润土,结合温控条件下的干湿循环试验,开展了不同侧限约束条件下、高压实高庙子膨润土的微观结构特征试验,分析研究了干湿循环条件下高压实膨润土的微结构特征。

1 材料与试验方法

1.1 材料与样品制备

本文试验所采用的高庙子膨润土的基本性能: $G_s = 2.66$, $\text{pH} = 8.68 \sim 9.86$,液限为 276%,塑限为 37%,总比表面积为 $570 \text{ m}^2/\text{g}$,离子交换能力为 $77.30 \text{ mmol}/100\text{g}$,主要交换离子为 Na^+ ($43.36 \text{ mmol}/100\text{g}$)、 Ca^{2+} ($29.14 \text{ mmol}/100\text{g}$)、 Mg^{2+} ($12.33 \text{ mmol}/100\text{g}$)和 K^+ ($2.51 \text{ mmol}/100\text{g}$),主要矿物为蒙脱石(75.4%),石英(11.7%),长石(4.3%)和方石英(7.3%)。

试验采用特制模具将初始含水率为 10.65% 的高庙子膨润土粉末压实至直径 20 mm、厚 6 mm、干密度为 1.70 g/cm^3 的圆饼状试样,压实过程采用变形控制,垂向压实速率为 0.1 mm/min ,以保证压实试样的均匀性,尽管最终很难达到完全均质^[18]。

压制好的土样按照侧限与无侧限试验要求,直接放置于保湿器(用于自由膨胀试验,图 1(a)),和密封于特制压力盒中再放入保湿器(用于侧限状态下试验,图 1(b))。

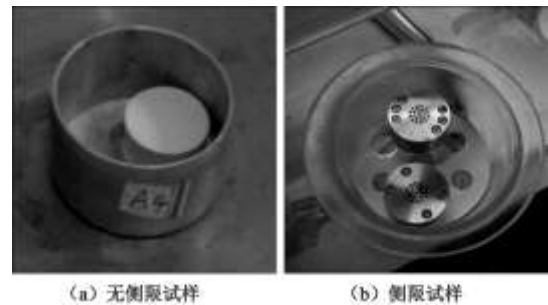


图 1 高压实膨润土

Fig. 1 Specimens of highly compacted bentonite

1.2 试验装置

试验装置是在叶为民等^[19]的气相法试验装置基础上改造而来,见图 2。干湿循环试验过程中的吸力控制采用气相法;温度控制采用数控烘箱,烘箱的温度控制精度为 $\pm 0.1^\circ\text{C}$ 。

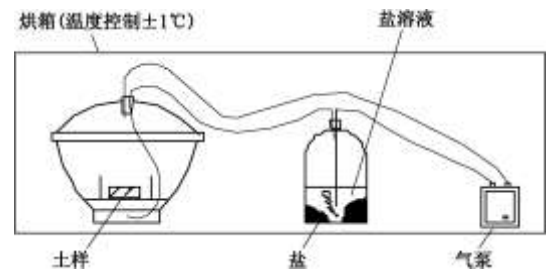


图 2 气相法控制吸力示意图

Fig. 2 Setup of vapour phase technique

1.3 试验方式与吸力控制

本文共完成了 40°C 、 60°C 条件下、吸力控制的侧限和无侧限试样的干湿循环试验,具体吸力路径如图 3 所示。其中: 60°C 时,以 340 MPa 为起始吸力控制点,待当前级吸力平衡后,逐级降低控制吸力直至 5.5 MPa,完成第一阶段的吸湿过程;随后,逐级提高控制吸力,完成脱湿过程。 40°C 试验,以 319 MPa 为起始吸力控制点,待当前级吸力平衡后,逐级降低控制吸力至 5.1 MPa,完成第一阶段吸湿过程;之后,逐级提高控制吸力,完成脱湿过程。其中, 40°C 无侧限试样脱湿到 40.6 MPa 吸力点后,开始第二次吸湿过

程。

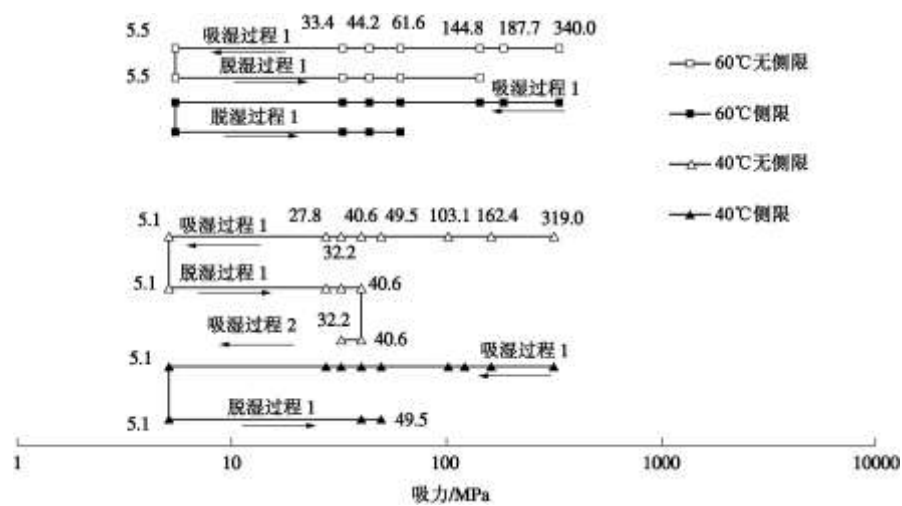


图 3 压实膨润土吸力控制的干湿循环路径

Fig. 3 Wetting/drying cycling paths for compacted bentonite under suction control

采用的饱和盐溶液在不同温度（20℃，40℃和 60℃）下的吸力值引自 Tang 等^[20]的标定结果（表 1）。为 150~200 nm。

表 1 不同温度下各盐溶液对应吸力

Table 1 Solutions and their corresponding suctions under different temperature

盐溶液	20℃	40℃	60℃
LiCl ₂	309.0	319.0	340.0
MgCl ₂	150.0	162.4	187.7
K ₂ CO ₃	113.0	122.0	144.8
Mg(NO ₃) ₂	82.0	103.1	139.0
NaNO ₃	39.0	49.5	61.6
NaCl	38.0	40.6	44.2
(NH ₄) ₂ SO ₄	24.9	32.2	
KCl	21.0	27.8	33.4
K ₂ SO ₄	4.2	5.1	5.5

1.4 微结构(MIP)试验

循环试验过程中，在预定的吸力控制点，采取试样开展孔率计法（MIP）微观结构试验。

首先将当前吸力点下、达到吸力平衡的试样由气相法试验装置中取出，迅速放入-80℃的超低温冰箱中速冻至冰点，再将冰冻试样在真空状态下升华以去除水分。这一过程可消除由于气、水相之间弯液面引起的表面张力。理想状态下，这一处理过程可将因试样失水可能引起的微结构变化降至最低。

2 试验结果与讨论

膨润土微观结构孔隙结构一般分为晶层间孔隙、集合体内孔隙和集合体间孔隙 3 种结构层次，如图 4 所示。Lloret 等^[7]将半径 0.2~2.0 nm 孔隙划分为晶层间的孔隙，这部分孔隙是压汞试验无法探测到的；而高压实膨润土集合体间孔隙和集合体内孔隙的分界点

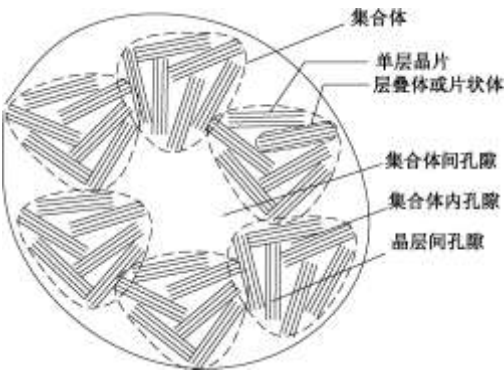


图 4 膨润土孔隙结构示意图

Fig. 4 Microstructure of compacted bentonite

图 5 为 40℃条件下、无侧限、高压实 GMZ01 膨润土，在经历不同干-湿循环过程后、同吸力点处的孔隙随孔径分布情况。图 5 表明，当 GMZ01 膨润土第一次吸湿到吸力为 32.2 MPa 时，孔隙分布呈双峰分布；当试样继续逐级吸湿到 5.1 MPa 后，再逐步脱水至 32.2 MPa 时，试样中集合体内孔隙数目减少，集合体间孔隙直径稍有增大，但数量（体积）减少；试样继续脱水至 40.6 MPa 后，第二次吸湿到 32.2 MPa 时，与第一次吸湿时相比，集合体内孔隙量减少，而集合体间大孔隙有一定增加。

图 6 为 60℃条件下、无侧限高压实 GMZ01 膨润土经历干-湿循环过程后、不同吸力点对应的孔隙随孔径分布情况。该图表明，当 GMZ01 膨润土第一次吸湿到吸力为 61.6 MPa 时，孔隙分布呈双峰分布；当试样继续吸湿到 5.5 MPa 时，集合体内部分小孔隙膨胀转变为大孔隙，使得集合体间大孔隙体积及孔径均有所增加，而集合体内小孔隙体积稍有减少；随后，试样逐步脱湿到 61.6 MPa 时，集合体内孔隙量几乎没

有变化, 集合体间较大孔隙则因脱湿而明显收缩。

上述现象说明: 高吸力 (>5 MPa) 范围内, 干湿循环路径对高压实膨润土集合体内孔隙与集合间孔隙的影响存在明显差异。伴随着吸湿过程的进行, 试样内部不同孔径的孔隙均发生了不同程度的膨胀, 其中集合体内小孔隙部分膨胀转变为大孔隙, 导致集合体间大孔隙体积增加, 而集合体内小孔隙体积减少; 同时集合体间大孔隙孔径在双电层作用下稍有增加。随后, 试样逐步脱湿, 集合体间孔隙出现分化, 部分较大孔径 (>3000 nm) 的孔隙收缩为集合体间较小孔径的孔隙 ($1000\text{ nm}<D<2000\text{ nm}$); 而试样脱湿过程中, 集合体内孔隙基本不受吸力增加的影响。

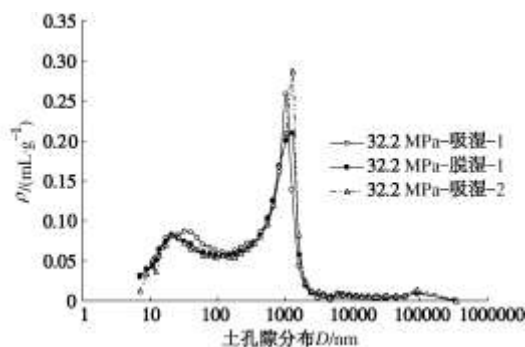


图5 干湿循环对无侧限、压实膨润土孔隙分布的影响 (40°C)

Fig. 5 Effects of wetting/drying cycles on pore distribution of unconfined compacted bentonite (40°C)

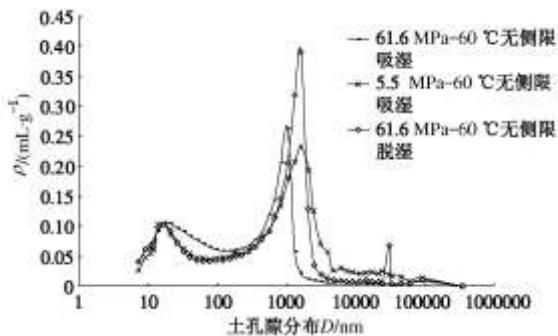


图6 干湿循环对无侧限、压实膨润土孔隙分布的影响 (60°C)

Fig. 6 Effects of wetting/drying cycles on pore distribution of unconfined compacted bentonite (60°C)

究其原因, 可能是高吸力 (>5 MPa) 范围内的、干湿循环过程中, 不同孔径的孔隙的水理特性差异所造成的。吸湿过程中, 各类孔隙均因吸水而膨胀。失水过程中, 集合体内孔隙, 因其孔径小而没有发生失水, 孔隙量无变化; 而集合体间的孔隙, 会由孔径大到小依次发生排水, 从而导致部分较大孔径 (>3000 nm) 的孔隙被压缩为较小孔径 ($1000\text{ nm}<D<2000\text{ nm}$) 的孔隙。

图7为40°C条件下、侧限高压实 GMZ01 膨润土,

经历干-湿循环过程后、不同吸力点对应的孔隙随孔径分布情况。该图表明, 当 GMZ01 膨润土第一次吸湿到吸力为 5.1 MPa 时, 由于侧限作用, 因晶层与集合体吸水向大孔隙内的膨胀, 引起集合体间大孔隙量明显减少; 而集合体内小孔隙数量几乎没有变化。随后, 试样逐步脱湿至 103 MPa 吸力时, 集合体内小孔隙量仍然几乎不变, 而集合体间孔隙出现了分化, 部分较大孔径 (>2000 nm) 的孔隙收缩为集合体间较小孔径的孔隙 ($300\text{ nm}<D<700\text{ nm}$), 造成前者数量减少, 后者数量有所增加, 但增量有限。

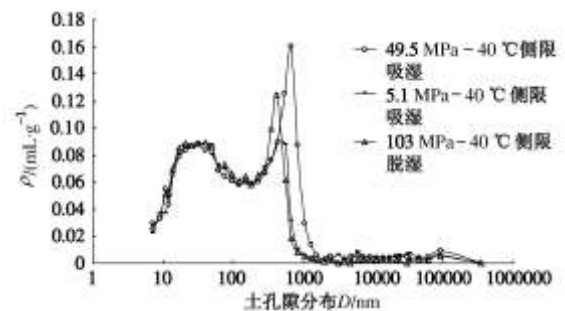


图7 侧限 GMZ01 膨润土干-湿循环过程中不同吸力点处的孔隙分布 (40°C)

Fig. 7 Pore distribution of confined compacted bentonite at different suctions under wetting/drying cycles (40°C)

3 结 论

特定温度下、高吸力 (>5 MPa) 范围内, 干湿循环路径对无侧限、高压实膨润土集合体内孔隙与集合间孔隙的影响存在明显差异。究其原因, 可能是高吸力 (>5 MPa) 范围内的、干湿循环过程中不同孔径的孔隙水理特性差异所造成的。随着温度的升高, 上述差异不断增大。

相同侧限条件下, 温度对干湿循环路径对高压实膨润土微结构的影响效果具有明显的放大作用, 即温度越高、干湿循环路径对高压实膨润土微结构的影响作用越明显。

参考文献:

- [1] VILLAR M V, et al, Influence of temperature on the hydro-mechanical behaviour of a compacted bentonite[J]. Applied Clay Science, 2004, 26: 337 - 350.
- [2] ROMERO E, GENS A, LLORET A. Temperature effects on the hydraulic behaviour of an unsaturated clay[J]. Geotech Geolog Eng 2001, 19: 311 - 332.
- [3] CHARNG H Juang, ROBERT D Holtz. Fabric, pore size distribution, and permeability of sandy soils[J]. Journal of Geotechnical Engineering, 1986, 12(9): 855 - 867.

- [4] PUSCH R. Mineral-water interactions and their influence on the physical behavior of highly compacted Na bentonite[J]. Canadian Geotechnical Journal, 1982, **19**: 381 - 387.
- [5] CUI Y J, LOISEAU C, DELAGE P. Microstructure changes of a confined swelling soil due to suction controlled hydration[C]// Proceedings of the 3rd International Conference on Unsaturated Soils (UNSAT 2002). Brazil, 2002: 593 - 598.
- [6] 叶为民, 黄雨, 崔玉军, 等. 自由膨胀条件下高压密膨胀黏土微观结构随吸力变化特征[J]. 岩石力学与工程学报, 2005, **24**(23): 4570 - 4575. (YE Wei-min, HUANG Yu, CUI Yun-jun, et al. Microstructural changing characteristics of densely compacted bentonite with suction under unconfined hydrating conditions[J]. Chinese Journal of Rock Mechanics and Engineering, 2005, **24**(23): 4570 - 4575. (in Chinese))
- [7] LLORET A, VILLAR M V. Advances on the knowledge of the thermo-hydro-mechanical behaviour of heavily compacted "FEBEX" bentonite[J]. Physics and Chemistry of the Earth, 2007(32): 701 - 715.
- [8] SAIYOURI N, HICHER PY, TESSIER D. Microstructural analysis of highly compacted clay swelling[C]// Proc 2nd Int Conf on Unsaturated Soils Academic publishers. Beijing, 1998(1): 119 - 124.
- [9] CUI Y J, LOISEAU C. Water transfer through a confined heavily compacted swelling soil[C]// Proceedings of 1st World Forum of Chinese Scholars in Geotechnical Engineering. Shanghai, 2003: 1 - 18.
- [10] CHEN Bao, QIAN Li-xin, YE Wei-min, et al. Soil-water characteristic curves of Gaomiaozi bentonite[J]. Chinese Journal of Rock Mechanics and Engineering, 2006, **25**(4): 788 - 793.
- [11] 何俊, 施建勇. 膨润土中饱和渗透系数的计算[J]. 岩石力学与工程学报, 2007, 26 (增刊 2): 3920 - 3925. (HE Jun, SHI Jian-yong. Calculation of saturated permeability of bentonite[J]. Chinese Journal of Rock Mechanics and Engineering, 2007, **26**(S2): 3920 - 3925. (in Chinese))
- [12] 叶为民, 黄伟, 陈宝, 等. 双电层理论与高庙子膨润土的体变特征[J]. 岩土力学, 2009, **30**(7): 1899 - 1903. (YE Wei-min, HUANG Wei, CHEN Bao, et al. Diffuse double layer theory and volume change behavior of densely compacted Gaomiaozi bentonite[J]. Rock and soil mechanics, 2009, **30**(7): 1899 - 1903. (in Chinese))
- [13] ALONSO E E. Gas migration through barriers[J]. Chinese Journal of Rock Mechanics and Engineering, 2006, **25**(4): 693 - 708.
- [14] PHAM H Q, FREDLUND D G, BARBOUR S L. A study of hysteresis models for soil-water characteristic curves[J]. Canadian Geotechnical Journal, 2005, **42**(6): 1548 - 1568.
- [15] LI X S. Modelling of hysteresis response for arbitrary wetting/drying paths[J]. Computers and Geotechnics, 2005(32): 133 - 137.
- [16] NUTH M, LALLOUI L. Advances in modeling hysteretic water retention curve in deformable soils[J]. Computers and Geotechnics, 2008(35): 835 - 844.
- [17] WEI C F, Dewoolkar M M. Formulation of capillary hysteresis with internal state variables[J]. Water Resources Research, 2006, **42**.
- [18] CUI Y J, DELAGE P. Yielding and plastic behavior of an unsaturated compacted silt[J]. Geotechnique, 1996, **46**(2): 291 - 311.
- [19] 叶为民, 唐益群, 崔玉军. 室内吸力量测与上海软土土水特征[J]. 岩土工程学报, 2005, **27**(3): 347 - 349. (YE Wei-min, TANG Yi-qun, CUI Yun-jun. Measurement of soil suction in laboratory and soil-water characteristics of Shanghai soft soil[J]. Chinese Journal of Geotechnical Engineering, 2005, **27**(3): 347 - 349. (in Chinese))
- [20] TANG Anh-minh, CUI Yu-jun. Controlling suction by the vapour equilibrium technique at different temperatures and its application in determining the water retention properties of MX80 clay[J]. Can Geotech, 2005(42): 1 - 10.