

НАБУХАНИЕ И ПРОНИЦАЕМОСТЬ КОМПАКТИРОВАННЫХ БЕНТОНИТОВ ПРИ ВЫСОКОМ СОЛЕСОДЕРЖАНИИ В УСЛОВИЯХ ИЗМЕНЕНИЯ ДАВЛЕНИЯ РАСТВОРА

А. Ю. Мелешин

Общество по безопасности сооружений и реакторов (GRS) гГмбХ, Брауншвейг

Статья поступила в редакцию 10 марта 2020 г.

В статье приводятся результаты исследований динамики набухания 15 бентонитов, уплотненных до объемной плотности $1,6 \text{ г/см}^3$ до и после годовичного контакта с модельным поровым раствором с солесодержанием 155 г/л . Для четырех исходных бентонитов было обнаружено наличие двойного максимума динамики набухания, наблюдавшегося ранее только при намного более низких концентрациях порового раствора. Для 80% бентонитов были получены значения давления набухания и проницаемости в диапазоне $0,8\text{--}4,8 \text{ МПа}$ и $7 \cdot 10^{-20}\text{--}3 \cdot 10^{-18} \text{ м}^2$ (для исходных) и $0,5\text{--}2,2 \text{ МПа}$ и $4 \cdot 10^{-19}\text{--}6 \cdot 10^{-18} \text{ м}^2$ (после годовичного контакта с раствором). Резкое увеличение давления раствора до $12,6 \text{ МПа}$ не вызвало гидравлического разрыва исходных бентонитов, что подвергает сомнению обоснованность пороговых значений в несколько мегапаскалей для гидравлического разрыва в компактированных бентонитах, предложенных ранее используя альтернативный экспериментальный метод. Однако, подобное значительное увеличение давления раствора, и сравнительно небольшое в $0,3 \text{ МПа}$ привело к снижению величины давления набухания (вплоть до 66%). Данный эффект следует принимать во внимание при проектировании и оценке эффективности основанных на бентонитах инженерных барьеров безопасности (ИББ) в пунктах глубинного захоронения радиоактивных отходов (ПГЗРО).

Ключевые слова: радиоактивные отходы, бентонит, давление набухания, проницаемость, давление раствора, инженерные барьеры, глубинное захоронение радиоактивных отходов

Введение

Давление набухания и проницаемость основанных на бентонитах ИББ являются ключевыми параметрами для разработки концепций изоляции ПГЗРО в глинистых и кристаллических формациях, поскольку ИББ должны минимизировать миграцию радионуклидов из ПГЗРО и обеспечить надежную изоляцию радиоактивных отходов [1, 2]. На глубине захоронения в несколько сотен метров эти барьеры будут подвергаться воздействию растворов, давление которых увеличится на несколько мегапаскалей в ходе установления гидравлических условий, присущих вмещающей формации,

после закрытия ПГЗРО. Кроме того, генерация и аккумуляция газов в ПГЗРО может вызвать дополнительное увеличение давления раствора. В связи с этим были высказаны опасения, что увеличение давления раствора может привести к гидравлическому разрыву компактированных бентонитов, который будет сопровождаться образованием предпочтительных путей фильтрации воды и миграции радионуклидов через созданные на их основе ИББ или вдоль их контакта с канистрами, содержащими РАО, вмещающей породой или облицовкой горных выработок [3, 4].

Явление гидравлического разрыва тесно связано с набуханием и проницаемостью компактированных бентонитов, которые, в свою очередь, зависят от нескольких параметров, одним из которых является солесодержание инфильтрирующего раствора. Глинистые формации Северной Германии, потенциально пригодные для размещения ПГЗРО, отличаются высоким солесодержанием поровых растворов [1], поэтому определение давления набухания и проницаемости для компактированных бентонитов до и после длительного контакта с модельным поровым раствором являлось главной целью настоящего исследования. Резкое увеличение давления раствора в ходе экспериментов, как описано ниже, привело к получению дополнительных результатов, которые могут иметь значение для оценки влияния увеличения давления раствора на изолирующую способность компактированных бентонитов в ПГЗРО.

Материалы и методы

Бентониты и раствор

В качестве модельного порового раствора для нижнемеловых глин, рассматриваемых в качестве потенциальной вмещающей формации ПГЗРО в Северной Германии [1], использовался поровый раствор перекрывающей горной породы солевых диапиров, разбавленный до солесодержания в 155 г/л (далее в тексте — VGH, аббревиатура немецкого *verdünnte Gipshutlösung*) и состоящий из NaCl (145,9 г/л), CaCl₂ (3,5 г/л), Na₂SO₄ (5,4 г/л) и KCl (0,4 г/л). Бентониты B04 и SD80 (Греция, Милос), B09 (США, Вайоминг); B10, B11, и B12 (Индия, Катч), B13 (Венгрия), B16 (Германия, Бавария), B19 (Испания, Альмерия), B23 (Аргентина), B31 (Армения), B36 (Словакия, Лисковец), B37 (Словакия, Йельсовы поток), B38 (Россия) и B49 (Турция, Балекефир) с массовой долей смектитов в диапазоне от 63 до 91 % [5] были предоставлены д-ром Штефаном Кауфхольдом (BGR, Ганновер). Все бентониты были раздроблены в щековой дробилке и смолоты в планетарной шаровой мельнице PM 400 (Retsch) в течение 30 минут при 230 оборотах в минуту с использованием трех больших (3 см) и двух маленьких (2 см) шаров. Перед использованием в первой серии экспериментов бентониты высушивались при 50 °С. Во второй серии бентонитовые порошки выдерживались в контакте с VGH при соотношении масс бентонита и раствора 1:2 в течение 430 ± 11 дней при 25 °С в стеклянных сосудах, запаянных после продувки суспензий N₂. После декантации растворов бентониты высушивались до воздушно-сухого состояния и размалывались до состояния порошка.

Постановка экспериментов

Эксперименты были проведены с использованием 11 (в первой серии) и 20 (во второй серии) жесткостенных пермеаметров постоянного напора, сделанных из титана и нержавеющей стали (по 10 пермеаметров) (рис. 1). Бентонитовый порошок засыпался между металлическими пористыми фильтрами и после установки поршня и упорной пластины с тензометрическим датчиком над верхним фильтром, статически уплотнялся в таблетку диаметром 5 см, высотой 1 см и объемной плотностью 1,6 г/см³. После этого гайка упорной пластины затягивалась без добавления аксиальной нагрузки. Во второй серии, перед затягиванием гайки упорной пластины, была дополнительно проведена трехкратная нагрузка/разгрузка бентонитов для исследования эффекта механической предобработки на набухание. Плотность скелета компактированных бентонитов вычислялась из объемной плотности 1,6 г/см³ и их влажности. Массовая доля воды в исходных бентонитах определялась высушиванием при 105 °С в течение 3–7 дней и составляла в среднем (4,1 ± 1,8)% при вариации в диапазоне от 0,6% для образца B09 и 1,7% для B31 до 5,8% для B37 и 8,5% для B49. Соответственно, плотность скелета исходных компактированных бентонитов составляла в среднем (1,54 ± 0,03) г/см³ и варьировала в диапазоне от 1,47 г/см³ для B49 и 1,51 г/см³ для B37 до 1,57 г/см³ для B31 и 1,59 г/см³ для B09.

Компактированные бентониты насыщались VGH из бюреток, присоединенных сначала к нижнему входу пермеаметра (при этом воздух из пор мог выходить через верхний выход пермеаметра) на срок до пяти недель, затем к верхнему входу пермеаметра на срок до пяти недель для достижения равномерного насыщения образца (рис. 1). Набухание компактированных бентонитов при насыщении считалось достаточным для изоляции возможных путей течения вдоль контакта с боковыми стенками пермеаметра и обеспечения фильтрации раствора только через поровое пространство бентонита.

Давление набухания в пермеаметрах измерялось непрерывно 12 тензометрическими датчиками FKA613 (Ahlborn) и дополнительно, во второй серии, 8 тензометрическими датчиками 8402-6020 (burstner). По достижении постоянного уровня давления набухания раствор закачивался насосом через нижний вход пермеаметра под давлением 0,2 МПа, а проницаемость вычислялась из массы раствора, профильтровавшегося через верхний выход пермеаметра (рис. 1). Динамическая вязкость VGH — (2,084 ± 0,003) мкПа·с — была определена при 25 °С в девяти повторных измерениях.



Рис. 1. Конструкционная схема пермеаметра (а); подача VGH на нижние входы пермеаметров из бюреток (б) для насыщения бентонитов и насосом (в) для измерения проницаемости (профильтрованный раствор собирался в пластиковых сосудах, соединенных с верхними выходами пермеаметров)

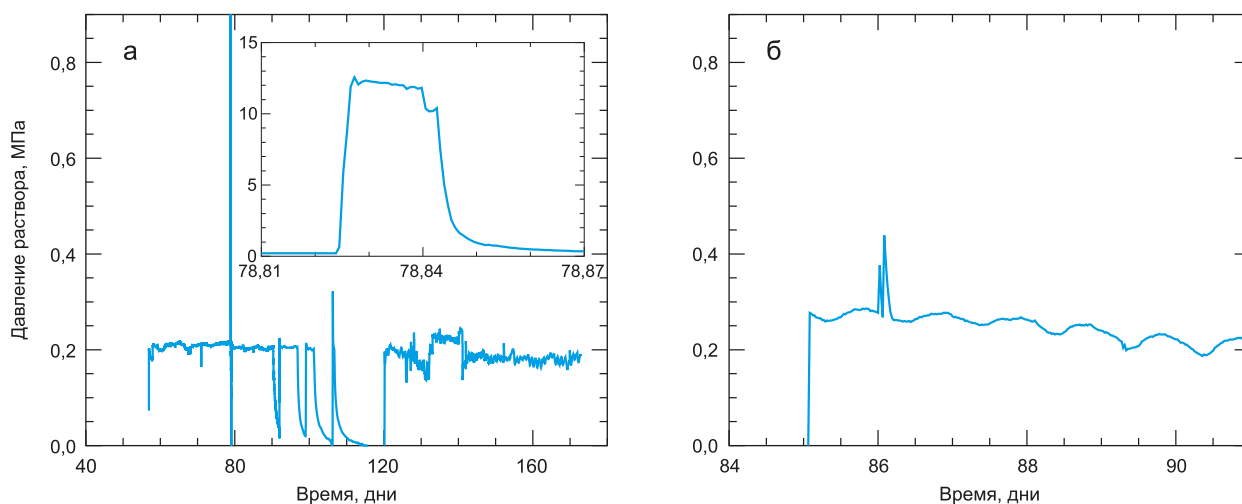


Рис. 2. Давление закачиваемого раствора (МПа) в первой (а) (вставка: крупный план резкого увеличения давления) и второй (б) серии

На 79 день первой серии экспериментов сбой в работе поршневого насоса (BESTA HD 2-200) вызвал резкое увеличение давления закачиваемого раствора до 12,6 МПа, продолжавшееся около 45 минут (рис. 2). Во второй серии, при заданном значении давления закачиваемого раствора 0,2 МПа, давление увеличилось до 0,3 МПа при подсоединении пермеаметров к насосу и затем, на 86 день, — до 0,44 МПа (рис. 2).

Результаты и обсуждение

Давление набухания и проницаемость

Для различных бентонитов (в т. ч. из Милоса и Вайоминга) с массовой долей смектитов от 50%, не подвергавшихся никакой обработке, кроме размалывания, до их уплотнения до плотности

скелета 1,45–1,62 г/см³, при насыщении 3 М раствором NaCl были опубликованы значения давления набухания в диапазоне 1,2–5,4 МПа [6]. Для сравнения: при насыщении дистиллированной водой давление набухания этих бентонитов увеличивалось до 4,2–7,6 МПа [6]. Для бентонитов FEBEX и GMZ01 при несколько более высоких плотностях скелета 1,65–1,7 г/см³ и насыщении 2–2,5 М раствором NaCl были опубликованы значения давления набухания в диапазоне 2,8–3,1 МПа [7–9]. Значения давления набухания в диапазоне 1,2–4,8 МПа, полученные в настоящей работе для 11 из 15 исходных бентонитов при насыщении раствором VGH с молярностью 2,6 М (табл. 1), сопоставимы с опубликованными ранее значениями. В то же время значения давления набухания 0,7–0,9 МПа для В19

и 0,3 МПа для В12 и В37 являются значительно более низкими, чем опубликованные в работе [6] для похожих значений плотностей скелета. Причиной этого расхождения может быть отличающийся режим насыщения бентонитов, использованный в последней работе, при котором бентониты последовательно насыщались по одной неделе дистиллированной водой 0,1 М, 0,3 М, 1 М и только затем 3 М раствором NaCl. Очевидно, что в этом случае в первые четыре недели контакта имелось значительно большее различие между концентрациями ионов в исходном растворе нанопор между кристаллитами монтмориллонита и в насыщающей воде (насыщающем растворе), чем в экспериментах настоящей работы, которое неизбежно должно было привести к большему поглощению воды в эти нанопоры и к большему давлению набухания. Давление набухания 0,0 МПа для В23 было получено в первой серии, вероятно, вследствие неустановленного дефекта пермеаметра (возможно, уплотняющего кольца поршня). После плановой замены уплотняющих колец во второй серии подобные значения не наблюдались.

Лабораторные и *in situ* значения проницаемости глин варьируют в диапазоне 10^{-23} – 10^{-17} м² [10, 11]. Проницаемости, полученные в настоящей работе для исходных бентонитов и бентонитов после контакта с VGH, также сопоставимы с этим диапазоном (табл. 1). Для исходных В04 и SD80 из Милоса при плотности скелета 1,52–1,53 г/см³ была получена наименьшая средняя проницаемость $6,9 \cdot 10^{-20}$ м², которая сопоставима с проницаемостью $(9,2–9,4) \cdot 10^{-20}$ м², рассчитанной из опубликованных значений гидравлических проводимостей для 2 М раствора NaCl и бентонита GMZ01 при более высокой плотности скелета 1,70 г/см³ [8, 9]. Интегральная проницаемость основанных на бентонитах ИББ в концепциях ПГЗРО в немецких глинистых формациях не должна превышать $2 \cdot 10^{-17}$ м² [2]. Данные, полученные в настоящей работе, показывают, что при плотности скелета 1,47–1,59 г/см³, все исходные бентониты, за исключением В23, и все бентониты после контакта с модельным поровым раствором соответствуют этому требованию, хотя средняя проницаемость $1,8 \cdot 10^{-17}$ м², полученная для исходного

Таблица 1. Давление набухания (P_j) и проницаемость (ρ) исходных бентонитов ($P_{s,u}$ и ρ_u) и бентонитов после контакта с VGH ($P_{s,r}$ и ρ_r) до и после скачка давления раствора в 12,6 МПа в первой и 0,3 МПа во второй* серии экспериментов***

	$P_{s,u}$, МПа (до скачка)	$P_{s,u}$, МПа (после скачка)	ρ_u , м ²	$P_{s,r}$, МПа*** (до скачка)	$P_{s,r}$, МПа*** (после скачка)	ρ_r , м ² ***
В04	3,64±0,01	2,48±0,01	$8,1 \cdot 10^{-20}$	1,40±0,01	0,48±0,01	$1,9 \cdot 10^{-18}$
В09	1,26±0,01	0,75±0,01	$1,1 \cdot 10^{-18}$	0,13±0,04**	0,21±0,05**	$5,4 \cdot 10^{-18}$
В10	3,91±0,01***	3,91±0,01***	–****	0,54±0,05**	0,20±0,03**	$1,7 \cdot 10^{-18}$
В11	2,30±0,01	1,99±0,01	$3,9 \cdot 10^{-19}$	0,30±0,04**	0,19±0,09**	$5,4 \cdot 10^{-18}$
В12	0,35±0,01	0,17±0,01	$2,0 \cdot 10^{-18}$	1,09±0,05**	0,68±0,09**	$9,9 \cdot 10^{-19}$
В13	2,89±0,01	1,99±0,01	$6,1 \cdot 10^{-19}$	1,02±0,01	0,72±0,01	$2,7 \cdot 10^{-18}$
В16	1,18±0,01	0,93±0,01	$2,1 \cdot 10^{-18}$	0,19±0,05**	0,37±0,08**	$5,2 \cdot 10^{-18}$
В19	0,73±0,01 0,88±0,02***	0,53±0,01 0,86±0,02***	$3,1 \cdot 10^{-18}$ $1,6 \cdot 10^{-18}$	0,93±0,01	0,72±0,01	$4,3 \cdot 10^{-18}$
В23	0,00±0,01	0,00±0,02	$3,0 \cdot 10^{-17}$	0,48±0,05**	0,51±0,09**	$2,3 \cdot 10^{-18}$
В31	4,72±0,01	3,94±0,01	$5,0 \cdot 10^{-19}$	0,78±0,02	0,52±0,02	$2,6 \cdot 10^{-18}$
В36	2,67±0,01	2,13±0,01	$9,7 \cdot 10^{-18}$	0,69±0,07** 0,69±0,01	0,91±0,09**	$1,0 \cdot 10^{-17}$ $1,4 \cdot 10^{-17}$
В37	0,31±0,01	0,31±0,01	$2,0 \cdot 10^{-17}$	1,39±0,04	0,89±0,01	$4,1 \cdot 10^{-19}$
В38	1,60±0,01***	1,63±0,01***	$1,9 \cdot 10^{-18}$	0,55±0,01	0,56±0,01	$1,8 \cdot 10^{-17}$
В49	4,28±0,06***	3,25±0,01***	$1,0 \cdot 10^{-18}$	1,98±0,05**	1,73±0,08**	$2,4 \cdot 10^{-18}$
SD80	4,85±0,01***	4,98±0,02***	$6,9 \cdot 10^{-20}$	1,34±0,01 2,21±0,01	1,28±0,01	$6,9 \cdot 10^{-19}$ $2,5 \cdot 10^{-19}$

* вторые значения в ячейках таблицы для В19, В36 и SD80 являются результатами повторных измерений

** значения, полученные с использованием тензометрических датчиков от burster

*** значения, полученные во второй серии экспериментов

**** значение не получено вследствие отсутствия фильтрации раствора через таблетку

В37 и В38 после контакта с VGH, близка к этому предельному значению. Сравнение данных для исходных образцов и образцов бентонитов после контакта с VGH показывает, что длительное взаимодействие с VGH привело к статистически значимому увеличению давления набухания и снижению проницаемости только для В12, В23 и В37 (табл. 1). Установление причин такого разного поведения предполагает проведение микроструктурного анализа и выходит за рамки настоящего исследования.

Эффект микроструктурной реорганизации

Динамика набухания бентонитов, наблюдавшаяся при насыщении растворами с низким солесодержанием во многих экспериментах (как обсуждается в работе [12]), характеризуется быстрым начальным увеличением (например, в течение 10 часов для бентонита GMZ01 [8])

с последующим промежуточным снижением и вторым увеличением (через 30–40 часов для бентонита GMZ01 [8, 13]) до окончательного стационарного значения. Такой двойной максимум динамики объясняется быстрым набуханием агрегатов (первый максимум), после которого следует деформация и, при достаточном насыщении, частичный распад агрегатов с сопутствующим коллапсом межагрегатных пор (минимум после первого максимума), а также окончательное набухание уже реорганизованных и частично уменьшившихся агрегатов (второй максимум) [12]. При концентрациях солей выше ~0,5 М для бентонита GMZ01 наблюдался только первый максимум [8].

При значительно более высокой концентрации соли в 2,6 М в VGH исходные В04, В13, В16 и В31 тем не менее характеризуются двойным максимумом динамики набухания (рис. 3). Это наблюдение позволяет предположить, что

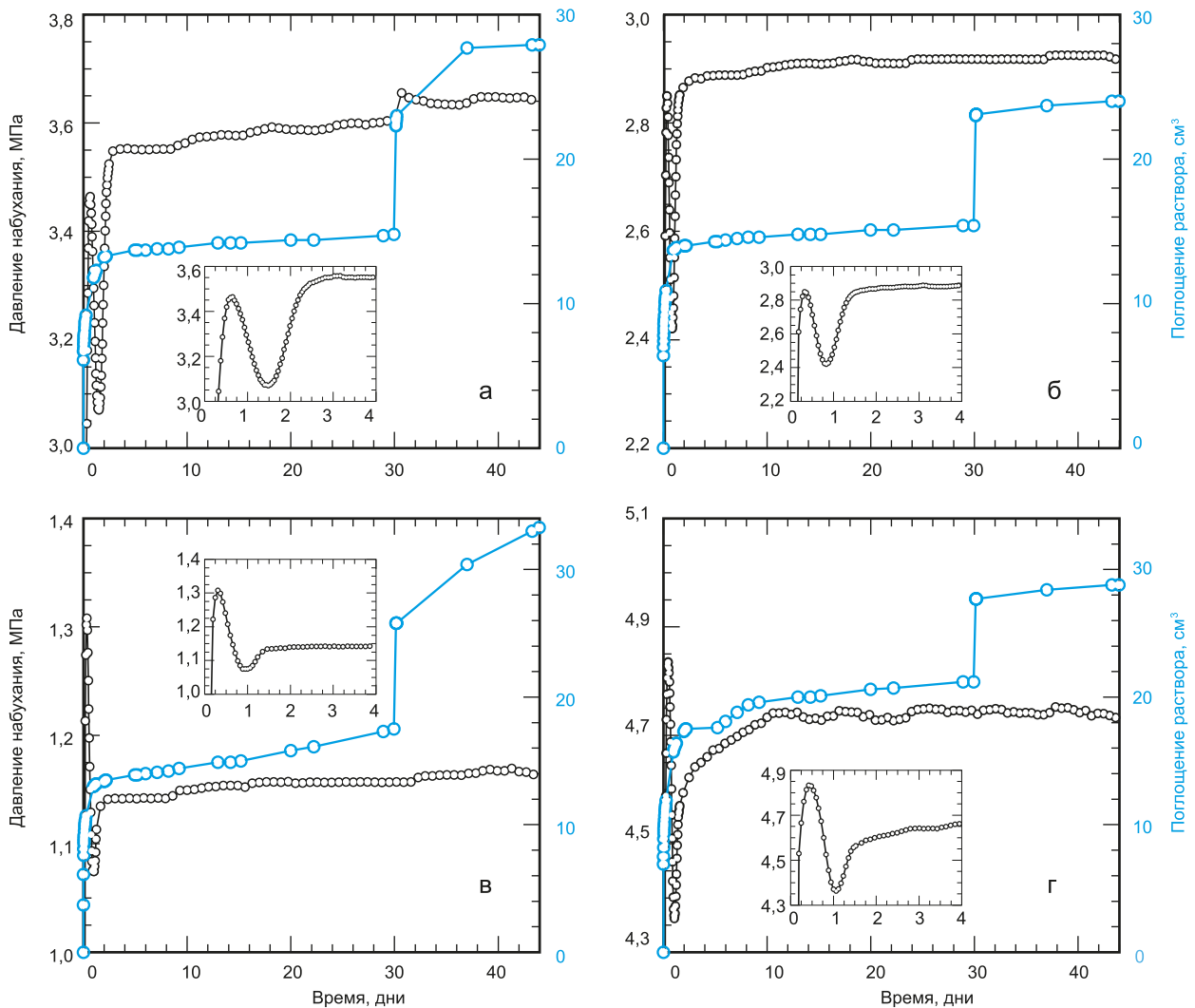


Рис. 3. Давление набухания и поглощение раствора исходными В04 (а), В13 (б), В16 (в) и В31 (г) (плотности скелета 1,52, 1,52, 1,54 и 1,57 г/см³ соответственно) при насыщении VGH из бюреток через нижние (в течение 30 дней) и затем верхние входы пермеаметров. Вставки: крупный план для первых четырех дней насыщения

наличие двойного максимума динамики набухания при высоких солесодержаниях насыщающих растворов может зависеть от типа бентонита. Как и в предыдущих работах ([8, 12, 13] и ссылки в них), исходные В04 и В13 характеризуются более высоким вторым максимумом, тогда как второй максимум для исходных В16 и В31, в отличие от предыдущих работ, ниже, чем первый (рис. 3). Причина этого наблюдения может заключаться в высоком солесодержании насыщающего VGH.

Несмотря на поглощение от 8 до 16 мл раствора через верхние входы пермеаметров (рис. 3), составляющих 50–100% объема, поглощенного до этого через нижние входы, давление набухания этих бентонитов не увеличилось (за исключением небольшого увеличения для В04). Это может свидетельствовать о том, что нанопоры между кристаллитами монтмориллонита

и внутриагрегатные микропоры, ответственные за описанную выше динамику набухания, в верхней части бентонитовой таблетки были уже насыщены водой, за исключением, вероятно, небольшой части таких пор в В04. Соответственно, раствор, поступающий с верхних входов, насыщал только межагрегатные микропоры, которые вносят незначительный вклад в макроскопическое давление набухания.

Примечательно, что в отличие от динамики набухания в первой серии, характеризующейся быстрым начальным увеличением давления набухания (рис. 3 и 4), ни такое увеличение, ни двойной максимум не наблюдались во второй серии как для исходных, так и для бентонитов после контакта с VGH (рис. 5). Вероятной причиной этого могла послужить трехкратная нагрузка/разгрузка компактированных бентонитов перед взаимодействием с VGH во второй серии.

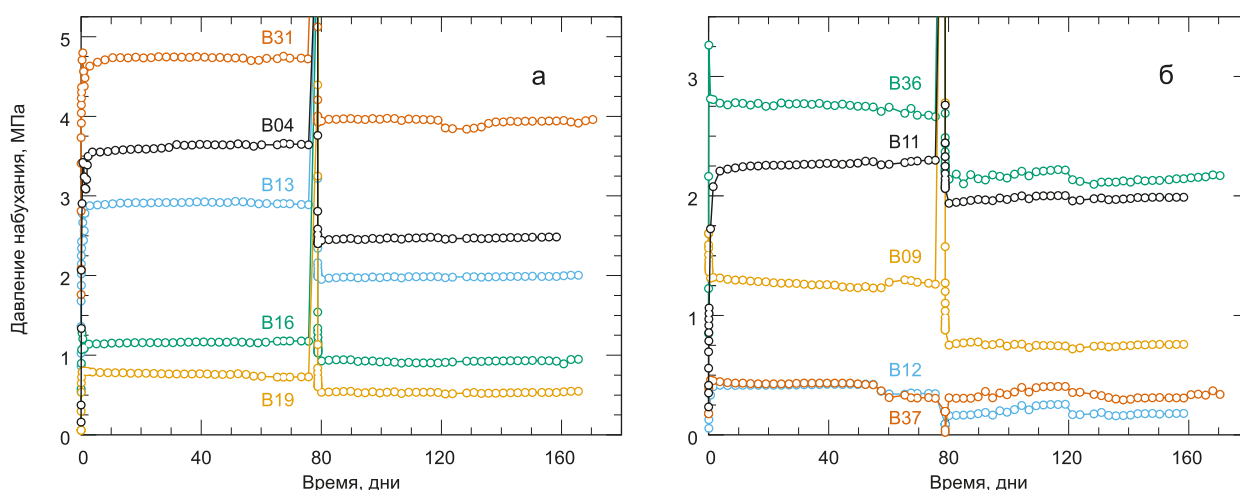


Рис. 4. Давление набухания исходных бентонитов В04, В13, В16, В19 и В31 (а), а также В09, В11, В12, В36 и В37 (б) при насыщении VGH в первой серии. Раствор VGH подавался в первые 44–57 дней из бюреток и затем закачивался насосом

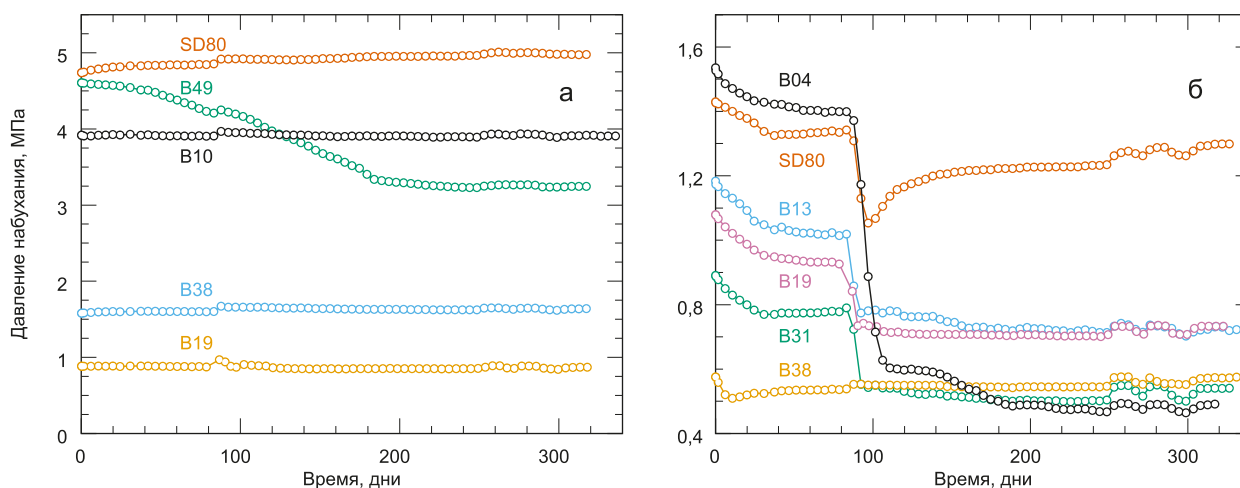


Рис. 5. Давление набухания исходных бентонитов В10, В19, В38, В49 и SD80 (а), а также бентонитов В04, В13, В19, В31, В38 и SD80 после годичного контакта с VGH (б) при насыщении VGH во второй серии. Раствор VGH подавался 75 дней из бюреток и затем, начиная с 85 дня, насосом

Сравнение динамик набухания, полученных для исходного В19 в первой и второй серии (рис. 4а, рис. 5б), свидетельствует в пользу этого предположения, поскольку трехкратная нагрузка/разгрузка была единственным отличием в подготовке двух экспериментов с этим бентонитом.

Предварительное высушивание бентонитов при высоких давлениях всасывания показало способность приводить к распаду больших агрегатов и микроструктурной реорганизации, сопровождающейся увеличением давления набухания [14] в процессе, по-видимому, очень похожему или идентичному обсужденному выше процессу, происходящему во время насыщения бентонита водой. Допущение, что энергия, поступившая во время нагрузки/разгрузки, является достаточной для инициирования распада больших агрегатов и микроструктурной реорганизации, может послужить объяснением отсутствия двойного максимума динамики набухания и отсутствия быстрого увеличения давления набухания во второй серии. Полученные снижения нагрузки, необходимой для уплотнения бентонитов В10, В38 и SD80 до заданной плотности $1,6 \text{ г/см}^3$ во время последовательных нагрузок (рис. 6), указывают на наличие микроструктурных изменений во время промежуточных разгрузок, что может свидетельствовать в пользу этой аргументации. Однако таких снижений нагрузки не наблюдалось для В49 (рис. 6), что предположительно обусловлено некоторым реорганизационным сопротивлением, присутствующим в его микроструктуре. В самом деле, в отличие от других исходных бентонитов, В49 характеризуется очень медленной реорганизацией микроструктуры при насыщении VGH, длящейся около 180 дней (рис. 5а).

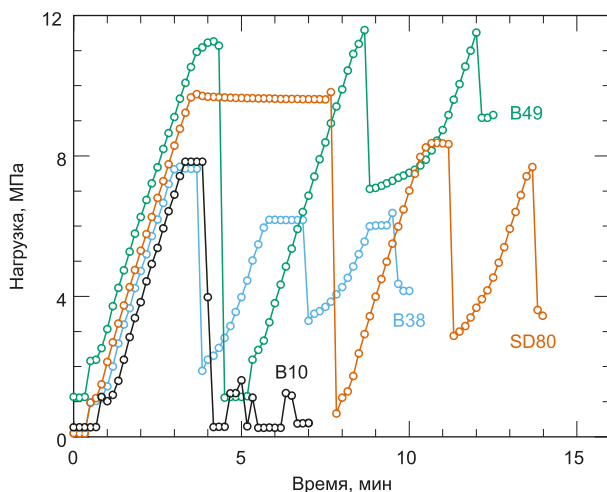


Рис. 6. Нагрузки, применявшиеся для трехкратного последовательного уплотнения В10, В38, В49 и SD80 до плотности $1,6 \text{ г/см}^3$ с промежуточными разгрузками

Влияние резкого увеличения давления раствора на показатели давления набухания и проницаемости

В первой серии экспериментов давление подаваемого к нижним входам пермеаметров раствора на 78 день резко увеличилось с 0,2 до 12,6 МПа и оставалось на этом уровне около 45 минут (рис. 2), что привело к значительному снижению давления набухания на 13–51% для 9 из 11 бентонитов к концу этого временного интервала (рис. 4, табл. 1). При этом тензометрические датчики в верхней части пермеаметров зарегистрировали дополнительные нагрузки в 6,1 МПа для В19, 9,8–10,2 МПа для В04, В11, В13 и В16, 10,9 МПа для В09, 11,7 МПа для В36 и 12,2 МПа для В31 (данные от датчиков в пермеаметрах с В12 и В37 во время скачка давления не поступали, предположительно из-за перегрузки).

Тот факт, что давление раствора в 12,6 МПа практически не изменилось на протяжении всего времени резкого увеличения давления (~45 минут), после которого насос восстановил заданное давление раствора 0,2 МПа (рис. 2), свидетельствует о том, что гидравлического разрыва бентонитовых таблеток не произошло. Из этого можно заключить, что сопутствующие дополнительные нагрузки, зарегистрированные тензометрическими датчиками, были обусловлены увеличившейся механической нагрузкой на таблетки, которая была передана на датчики минеральным скелетом образцов.

Исходя из этого, многообразие механических нагрузок, переданных на датчики различными бентонитами, может быть объяснено разными уровнями микроструктурной деформации в бентонитах.

Кроме того, не наблюдалось и увеличения объема профильтровавшегося раствора на выходах пермеаметров, что также свидетельствует об отсутствии гидравлических трещин в таблетках или на их границах со стенками пермеаметров (рис. 7а). Хотя вследствие резкого увеличения давления раствора проницаемость увеличилась для В16 и В36 в 1,8 и 4,1 раза соответственно, она осталась на низком уровне и составляла $(1,3–6,9) \cdot 10^{-18} \text{ м}^2$, что свидетельствует об отсутствии течения через гидравлические трещины в этих бентонитах. Через бентониты В04, В11–В13 и В31 раствор начал фильтроваться на следующий день после резкого увеличения давления раствора (рис. 7б), что указывает на причинно-следственную связь между этими событиями. Однако проницаемости этих бентонитов, вычисленные в допущении начала фильтрации во время резкого увеличения давления, были

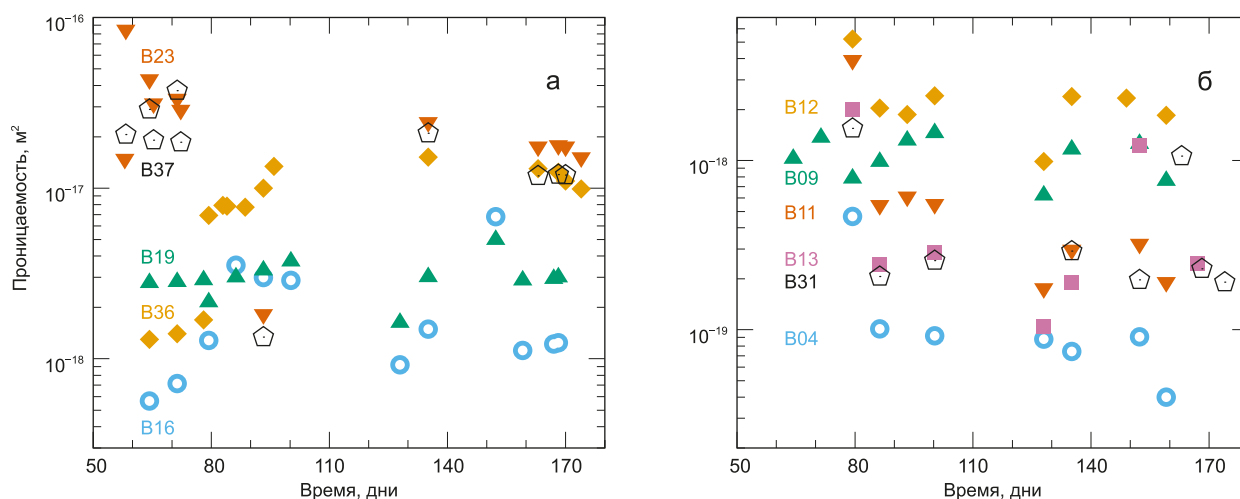


Рис. 7. Проницаемость исходных бентонитов для раствора VGH (m^2) в первой серии экспериментов

в диапазоне $4,7 \cdot 10^{-19} - 5,2 \cdot 10^{-18} m^2$ (рис. 7б), что свидетельствует об отсутствии течения через гидравлические трещины и в этих бентонитах. Спустя восемь дней проницаемости этих бентонитов уменьшились до $1,0 \cdot 10^{-19} - 2,0 \cdot 10^{-18} m^2$ (рис. 7б).

В экспериментах с бентонитом Кунигель V1, уплотненным до плотности скелета $1,6 g/cm^3$, гидравлический разрыв наблюдался в течение нескольких минут после увеличения давления раствора до пороговых значений в диапазоне $3,2 - 4,7 MPa$, тогда как для его смеси с песком $70:30$ наблюдался даже более широкий диапазон пороговых значений — от 2 до 8 МПа [3]. В связи с этим возникает вопрос: почему бентониты в настоящей работе характеризуются намного более высокой прочностью к гидравлическому разрыву (не менее $12,6 MPa$), чем Кунигель V1? Давление набухания, которое, как утверждается в работе [3], оказывает сильное влияние на давление гидравлического разрыва, варьирует для изучаемых бентонитов в широких пределах (табл. 1) ниже и выше значения $1,8 MPa$, полученного для Кунигель V1 [3], и, следовательно, не может быть причиной такого расхождения. Подобным образом содержание воды, повышение которого, как утверждается в работе [3], приводит к снижению прочности и к гидравлическому разрыву, также не может быть причиной этого расхождения, поскольку в момент резкого увеличения давления бентониты были насыщены водой и ее содержание (около 25%) было значительно выше, чем значение 12,5% для Кунигель V1 [3]. Из этого следует сделать вывод, что причиной обсуждаемого расхождения может служить отличающаяся постановка эксперимента в работе [3], использующая трубку диаметром 2 мм для закачивания воды в

ненасыщенный бентонит, уплотненный вокруг этой трубки, а это не сопоставимо с постановкой эксперимента в настоящей работе, применяющей закачку раствора через поверхность площадью $19,6 cm^2$ снаружи компактированного бентонита, и которая, как представляется, более сопоставима с ситуацией, ожидаемой в ПЗРО.

Во второй серии, вследствие резкого увеличения давления раствора с 0 до $0,28 MPa$ при подключении насоса и затем до $0,44 MPa$, давление набухания снизилось на 12–66% для 9 из 15 бентонитов, находившихся в однофазном контакте с VGH (табл. 1). Это снижение характеризовалось на первом этапе относительно большой величиной изменения и длительностью от двух (B13) до 20 (B04) дней и на втором этапе — относительно небольшой величиной изменения и длительностью около 80 дней (рис. 5б). Эксперименты с B19 демонстрируют, что вследствие годичного контакта с VGH в его микроструктуре, по-видимому, произошли некоторые существенные изменения, поскольку одно и то же резкое увеличение давления раствора вызвало снижение на 23% давления набухания бентонита B19, но не привело к статистически значимым изменениям давления набухания по сравнению с исходным образцом (рис. 5). Режим микроструктурной реорганизации, отличный от рассмотренных выше, был получен для бентонита SD80 после контакта с VGH, давление набухания которого снизилось на $0,37 MPa$ в течение 10 дней после резкого увеличения давления раствора, но увеличивалось монотонно на протяжении последующих 230 дней и практически вернулось к исходному значению к концу эксперимента (рис. 5б).

Представленные данные позволяют предположить, что снижение давления набухания вследствие резкого увеличения давления раствора вызвано некоторым процессом, приводящим в зависимости от типа бентонита к различным режимам микроструктурной реорганизации. Дополнительное уплотнение бентонитовых таблеток во время резкого увеличения давления, которое могло бы уменьшить высоту таблетки и, соответственно, снизить давление таблетки на тензиометрические датчики пермеметров, можно исключить как возможную причину, учитывая, что во второй серии экспериментов этот процесс протекал медленно, от нескольких дней до нескольких недель (рис. 5б). Этот процесс может быть обратным процессу распада больших агрегатов, который обсуждался в предыдущем разделе, и приводить к образованию более крупных агрегатов и пор в бентоните и, вследствие этого, к более низким макроскопическим давлениям набухания.

Заключение

Резкое увеличение давления раствора до 12,6 МПа не привело к гидравлическому разрыву компактированных исходных бентонитов, но значительно снизило давление набухания, предположительно, вследствие пластической деформации в компактированных бентонитах, поглотившей часть энергии импульса давления. Намного меньшее увеличение давления раствора в 0,3 МПа привело к похожему снижению давления набухания бентонитов, компактированных после их годовичного контакта с раствором VGH при 25 °С. Остается открытым вопрос, какие микроструктурные изменения ответственны за эти макроскопические наблюдения. При условии, что результаты настоящей работы получают независимое подтверждение и что наличие резкого увеличения давления раствора вследствие аккумуляции и выброса газа или других процессов в ПГЗРО могут представлять возможный сценарий его эволюции, решение этого вопроса может приобрести важное значение для проектирования и оценки эффективности основанных на бентонитах ИББ. Представляется также целесообразным выяснение вопроса, может ли эффект резкого увеличения давления раствора в компактированных бентонитах рассматриваться в качестве консервативного предела для ожидаемого постепенного увеличения давления раствора в ходе установления гидравлических условий, присущих вмещающей формации после закрытия ПГЗРО.

Благодарность

Настоящая работа финансировалась Федеральным министерством экономики и энергетики ФРГ (BMWi), представленным Агентством управления проектов Карлсруэ (PTKA-WTE) (проект Umwandlungsmechanismen in Bentonitbarrieren, код финансовой поддержки 02 E 11344A). Бентониты для проведения экспериментов были предоставлены д-ром Штефаном Кауфхольдом (BGR, Ганновер). Экспериментальные результаты были получены благодаря умелой работе сотрудников геохимической и геотехнической лаборатории ГПС Михаэля Крён (проведение экспериментов) и Вероники Праузэ (подготовка раствора и бентонитов, содержание воды). Автор выражает благодарность д-ру Чун-Лианг Чану (ГПС) за обсуждение концепции и результатов экспериментов.

Литература

1. Jobmann M., Bebiolka A., Burlaka V., Herold P., Jahn S., Lommerzheim A., Maßmann J., Meleshyn A., Mrugalla S., Reinhold K., Rübel A., Stark L., Ziefle G. Safety assessment methodology for a German high-level waste repository in clay formations // *Journal of Rock Mechanics and Geotechnical Engineering*. 2017. Vol. 9. Pp. 856–876.
2. Jobmann M., Bebiolka A., Jahn S., Lommerzheim A., Maßmann J., Meleshyn A., Mrugalla S., Reinhold K., Rübel A., Stark L., Ziefle G. Sicherheits- und Nachweismethodik für ein Endlager im Tongestein in Deutschland — Synthesebericht. Ber.-Nr. TEC-13-2016-AB, DBE TECHNOLOGY, BGR, GRS, Peine, Hannover, Braunschweig, 2017, 137 p.
3. Kobayashi A., Yamamoto K., Momoki S. Characteristics of strength for hydraulic fracturing of buffer material // *Soils and Foundations*. 2008. Vol. 48. Pp. 467–477.
4. Chen Y. G., Jia L. Y., Ye W. M., Chen B., Cui Y. J. Advances in experimental investigation on hydraulic fracturing behavior of bentonite-based materials used for HLW disposal // *Environmental Earth Sciences*. 2016. Vol. 75. Pp. 1–14.
5. Kaufhold S., Hein M., Dohrmann R., Ufer K. Quantification of the mineralogical composition of clays using FTIR spectroscopy // *Vibrational Spectroscopy*. 2012. Vol. 59. Pp. 29–39.
6. Karnland O., Olsson S., Nilsson U. Mineralogy and sealing properties of various bentonites and smectite-rich clay materials. Report TR-06-30, SKB, Stockholm, 2006. 70 p.
7. Lloret A., Villar M. V. Advances on the knowledge of the thermo-hydro-mechanical behaviour of heavily compacted “FEBEX” bentonite // *Physics and*

Chemistry of the Earth. Parts A/B/C. 2007. Vol. 32. Pp. 701–715.

8. Zhu C. M., Ye W. M., Chen Y. G., Chen B., Cui Y. J. Influence of salt solutions on the swelling pressure and hydraulic conductivity of compacted GMZ01 bentonite // Engineering Geology. 2013. Vol. 166. Pp. 74–80.

9. Chen Y. G., Zhu C. M., Ye W. M., Cui Y. J., Wang Q. Swelling pressure and hydraulic conductivity of compacted GMZ01 bentonite under salinization–desalinization cycle conditions // Applied Clay Science. 2015. Vol. 114. Pp. 454–460.

10. Brace W. F. Permeability of crystalline and argillaceous rocks // International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences & Geomechanics Abstracts. 1980. Vol. 17. Pp. 241–251.

11. Neuzil C. E. How permeable are clays and shales? // Water Resources Research. 1994. Vol. 30. Pp. 145–150.

12. Yigzaw Z. G., Cuisinier O., Massat L., Masroufi F. Role of different suction components on swelling behavior of compacted bentonites // Applied Clay Science. 2016. Vol. 120. Pp. 81–90.

13. Ye W. M., Wan M., Chen B., Chen Y. G., Cui Y. J., Wang J. Temperature effects on the swelling pressure and saturated hydraulic conductivity of the compacted GMZ01 bentonite // Environmental Earth Sciences. 2013. Vol. 68. Pp. 281–288.

14. Lang L. Z., Baille W., Tripathy S., Schanz T. Experimental study on the influence of preliminary desiccation on the swelling pressure and hydraulic conductivity of compacted bentonite // Clay Minerals. 2018. Vol. 53. Pp. 733–744.

Информация об авторе

Мелешин Артур Юрьевич, д-р естественных наук, научный сотрудник Общества по безопасности сооружений и реакторов (ГРС) гГmbH (38122, Германия, Брауншвайг, Теодор-Хойсс-Штрассе, 4), e-mail: artur.meleshyn@grs.de.

Библиографическое описание статьи

Мелешин А. Ю. Набухание и проницаемость компактированных бентонитов при высоком солесодержании в условиях изменения давления раствора // Радиоактивные отходы. 2020. № 2 (11). С. 109–119. DOI: 10.25283/2587-9707-2020-2-109-119.

SWELLING BEHAVIOUR AND PERMEABILITY OF COMPACTED BENTONITES AT HIGH SALINITY AS INFLUENCED BY FLUID PRESSURE CHANGES

Meleshyn A. Yu.

Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, Braunschweig, Germany

Article received on March 10, 2020

This study presents results of two series of permeameter experiments with 15 bentonites compacted to a bulk density of 1.6 g/cm³ before and after one-year contact with a model clay porewater with a salinity of 155 g/l. For four original bentonites, a double-peak pattern of swelling pressure evolution was revealed, which was observed previously only at much lower salinities. For 80% of bentonites, swelling pressure and permeability were in the range of 0.8–4.8 MPa and 7·10⁻²⁰–3·10⁻¹⁸ m² (for original ones) as well as 0.5–2.2 MPa and 4·10⁻¹⁹–6·10⁻¹⁸ m² (for ones after one-year contact). A fluid pressure surge of 12.6 MPa caused no hydraulic fracturing of original bentonites. This observation challenges the validity of threshold values of a few MPa for onset of hydraulic fracturing in compacted bentonites proposed earlier using an alternative experimental method. Yet, this fluid pressure surge and a moderate one of 0.3 MPa caused a decrease of swelling pressure by up to 66% – an effect, which need to be accounted for when designing and assessing the performance of bentonite-based barriers in a geological repository.

Keywords: radioactive waste, bentonite, swelling pressure, permeability, fluid pressure, engineered barriers, geological repository.

Acknowledgement

Funding of the study by the Federal Ministry of Economic Affairs and Energy (BMWi), represented by the Project Management Agency Karlsruhe (PTKA-WTE), contract no. 02E11344A, is gratefully acknowledged. Dr. Stephan Kaufhold (BGR, Hannover) is gratefully acknowledged for providing bentonites. The experimental results were obtained owing to a skilful lab work of Michael Kröhn (swelling pressure and permeability experiments) and Veronika Prause (preparation of bentonites and solution, water contents) of the geoscientific laboratory of the GRS. Discussions with Dr. Chun-Liang Zhang (GRS) on experimental design and results are gratefully acknowledged.

References

1. Jobmann M., Bebiolka A., Burlaka V., Herold P., Jahn S., Lommerzheim A., Maßmann J., Meleshyn A., Mrugalla S., Reinhold K., Rübél A., Stark L., Ziefle G. Safety assessment methodology for a German high-level waste repository in clay formations. *Journal of Rock Mechanics and Geotechnical Engineering*. 2017. Vol. 9. Pp. 856–876.
2. Jobmann M., Bebiolka A., Jahn S., Lommerzheim A., Maßmann J., Meleshyn A., Mrugalla S., Reinhold K., Rübél A., Stark L., Ziefle G. *Sicherheits- und Nachweismethodik für ein Endlager im Tongestein in Deutschland – Synthesebericht*. Ber.-Nr. TEC-13-2016-AB, DBE TECHNOLOGY, BGR, GRS, Peine, Hannover, Braunschweig, 2017, 137 p.
3. Kobayashi A., Yamamoto K., Momoki S. Characteristics of strength for hydraulic fracturing of buffer material. *Soils and Foundations*. 2008. Vol. 48. Pp. 467–477.
4. Chen Y. G., Jia L. Y., Ye W. M., Chen B., Cui Y. J. Advances in experimental investigation on hydraulic fracturing behavior of bentonite-based materials used for HLW disposal. *Environmental Earth Sciences*. 2016. Vol. 75. Pp. 1–14.
5. Kaufhold S., Hein M., Dohrmann R., Ufer K. Quantification of the mineralogical composition of clays using FTIR spectroscopy. *Vibrational Spectroscopy*. 2012. Vol. 59. Pp. 29–39.
6. Karnland O., Olsson S., Nilsson U. *Mineralogy and sealing properties of various bentonites and smectite-rich clay materials*. Report TR-06-30, SKB, Stockholm, 2006, 70 p.
7. Lloret A., Villar M. V. Advances on the knowledge of the thermo-hydro-mechanical behaviour of heavily compacted “FEBEX” bentonite. *Physics and Chemistry of the Earth. Parts A/B/C*. 2007. Vol. 32. Pp. 701–715.
8. Zhu C. M., Ye W. M., Chen Y. G., Chen B., Cui Y. J. Influence of salt solutions on the swelling pressure and hydraulic conductivity of compacted GMZ01 bentonite. *Engineering Geology*. 2013. Vol. 166. Pp. 74–80.
9. Chen Y. G., Zhu C. M., Ye W. M., Cui Y. J., Wang Q. Swelling pressure and hydraulic conductivity of compacted GMZ01 bentonite under salinization–desalinization cycle conditions. *Applied Clay Science*. 2015. Vol. 114. Pp. 454–460.
10. Brace W. F. Permeability of crystalline and argillaceous rocks. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences & Geomechanics Abstracts*. 1980. Vol. 17. Pp. 241–251.
11. Neuzil C. E. How permeable are clays and shales? *Water Resources Research*. 1994. Vol. 30. Pp. 145–150.
12. Yigzaw Z. G., Cuisinier O., Massat L., & Masroufi F. Role of different suction components on swelling behavior of compacted bentonites. *Applied Clay Science*. 2016. Vol. 120. Pp. 81–90.
13. Ye W. M., Wan M., Chen B., Chen Y. G., Cui Y. J., Wang J. Temperature effects on the swelling pressure and saturated hydraulic conductivity of the compacted GMZ01 bentonite. *Environmental Earth Sciences*. 2013. Vol. 68. Pp. 281–288.
14. Lang L. Z., Baille W., Tripathy S., Schanz T. Experimental study on the influence of preliminary desiccation on the swelling pressure and hydraulic conductivity of compacted bentonite. *Clay Minerals*. 2018. Vol. 53. Pp. 733–744.

Information about the author

Meleshyn Artur Yurievich, Dr. rer. nat., researcher, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH (4, Theodor-Heuss-Straße, Braunschweig, D-38122, Germany), e-mail: artur.meleshyn@grs.de.

Bibliographic description

Meleshyn A. Yu. Swelling Behaviour and Permeability of Compacted Bentonites at High Salinity as Influenced by Fluid Pressure Changes. *Radioactive Waste*, 2020, no. 2 (11), pp. 109–119. (In Russian). DOI: 10.25283/2587-9707-2020-2-109-119.