

Study on the Thermal Properties of Compacted Bentonite

Zhe Wang^{1,2*}, Haifeng Li³

¹Nuclear Wastes and Environmental Safety Laboratory, Southwest University of Science and Technology, Mianyang Sichuan

²School of Earth and Space Sciences, University of Science and Technology of China, Hefei Anhui

³Sichuan College of Architectural Technology, Deyang Sichuan

Email: *wz2004@126.com

Received: Jun. 23rd, 2015; accepted: Jul. 12th, 2015; published: Jul. 16th, 2015

Copyright © 2015 by authors and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

Abstract

To analyze the relationship between dry density, water content, porosity, saturation and thermal properties, Hot disk thermal constants analyzer is used to measure the thermal properties of compacted Xinjiang Altay bentonite under different conditions. The test results of thermal conductivity are analyzed by several models. The experimental results show that thermal conductivity, thermal diffusivity and volumetric specific heat increase as the dry density and water content increase, and for the same water content, the thermal conductivity, thermal diffusivity and volumetric specific heat decrease as the porosity increase. When the saturation is more than 20%, exponential relationships between saturation and the thermal conductivity, thermal diffusivity, volumetric specific heat are observed respectively. By contrast, the equation obtained by experiments and Kahr's model is more suitable for predicting the thermal conductivity of Xinjiang Altay bentonite.

Keywords

High-Level Radioactive Waste, Bentonite, Thermal Properties, Prediction

压实膨润土的导热特性研究

王哲^{1,2*}, 李海峰³

¹西南科技大学, 核废物与环境安全国防重点学科实验室, 四川 绵阳

²中国科学技术大学, 地球与空间科学学院, 安徽 合肥

³四川建筑职业技术学院, 四川 德阳

*通讯作者。

Email: *wz2004@126.com

收稿日期: 2015年6月23日; 录用日期: 2015年7月12日; 发布日期: 2015年7月16日

摘要

利用Hot disk热常数分析仪测定了压实新疆阿尔泰膨润土在不同条件下的导热性能。探讨了干密度、含水量、孔隙度、饱和度与导热性能的关系,并运用了多种模型对热传导系数进行了预测对比分析。结果表明:阿尔泰膨润土的热传导系数、热扩散系数和体积比热均随着干密度和含水量的增大而增大;相同含水量条件下,均随孔隙度的增大而减小;在饱和度大于20%时,饱和度与热传导系数、热扩散系数和体积比热具有明显的指数关系。通过对比,得到实验所得方程与Kahr模型能较好地预测阿尔泰膨润土的热传导系数。

关键词

高放废物, 膨润土, 导热特性, 预测

1. 引言

对于高放废物的处置,目前国际上主要倾向于采用深地质处置,即将高放废物深埋于距地表500~1000 m深的稳定地质体中,人为设置多重屏障来阻止核素的泄漏与迁移,以达到对高放废物的安全处置[1]。处置库中的回填材料受地下水、应力及核废料放热产生的温度等因素影响[2],在热-力-水多场耦合场中,高压实膨润土作为高放处置库的最后一道人工屏障,要求其具有良好的导热性能和热稳定性能,因此,缓冲/回填材料的热传导性能参数是高放废物深地质系统设计的一项关键指标[3]。

目前,关于缓冲/回填材料导热性能的研究,国内外已取得了一定成果。朱国平等[4]用NK-III100E型双试件热导率测定仪测定高庙子膨润土的热传导系数,探讨了含水量与热传导系数的关系;刘月妙等人[5]研究了内蒙古高庙子天然钠基膨润土GMZ01与石英砂和石墨混合材料GMZM不同压实密度和不同含水量样品的导热性能,探讨了含水量、干密度、矿物组成和微结构与热传导系数的关系;谢敬礼等人[6]在高庙子膨润土GMZ001中添加不同比例的石英砂配制成混合材料,采用瞬变平面热源法测定不同压实密度、不同含水量的砂-膨润土混合材料的热传导系数和热扩散系数,探讨了压实密度、含水量及含砂量与热传导系数和热扩散系数的关系;崔玉军等人[7]以美国MX80膨润土为研究对象,探讨了干密度、含水量、饱和度、孔隙气体体积与热传导系数的关系;J. Pacavsky [8]研究了RMN膨润土与石英和石墨混合材料的热传导系数,探讨了温度、干密度和含水量与热传导系数的关系;Anh-Minh Tang等人[9]采用热丝法来测定压实的MX80膨润土的导热率,探讨了矿物成分、含水量、干密度、滞后、饱和度及组分的体积分数与热传导系数的关系。然而,目前还没有人对新疆阿尔泰膨润土的导热性能作过系统的研究。

本文以新疆阿尔泰膨润土为研究对象,采用基于瞬变平面热源法的Hot disk TPS2005S热常数分析仪,在室温条件对不同干密度和不同含水量压实膨润土的热传导系数、热扩散系数和体积比热进行量测,分析探讨了不同因素对热传导系数、热扩散系数和体积比热的影响,并运用多种热传导模型对新疆阿尔泰膨润土的热传导系数进行了预测。

2. 试验与材料

2.1. 试验原理

试验采用基于瞬变平面热源法的Hot disk TPS2005S热常数分析仪,试验装置如图1。它的核心元件



Figure 1. Thermal constant analyzer (Hot Disk TPS2500S)
图 1. Hot Disk TPS2500S 热常数分析仪

是一个可同时作为热源和温度传感器的平面形 Hot disk 探头，测试时，在探头上加载恒定电流，引起温度增加，探头的电阻发生变化，从而在探头两端产生电压差。根据样品导热性能的不同，探头的热量散失不同，产生的电压变化也不同。因此，通过记录在一段时间内电压的变化，可以较为精确地得到探头温度的变化，进而测得被测样品的热传导系数、热扩散系数和体积比热。

2.2. 试验材料

试验材料为新疆阿尔泰市售 200 目钠基膨润土，新疆阿尔泰膨润土矿地处新疆准噶尔盆地北部边缘，是目前世界发现的较大矿床之一，也是我国发现的最大的膨润土矿床。其主要矿物为 Na-蒙脱石，含量约为 65%，另有少量 α -石英，约为 9%，液限为 102.7%，塑限为 36.4%，比重为 2.77，离子交换容量为 $1.02 \text{ mmol}\cdot\text{g}^{-1}$ 。

2.3. 试样制备

为了研究干密度、含水量等对膨润土导热性能的影响，本次试验按照 12%，14%，16% 和 18% 含水量及 $1.2\sim 1.8 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ 等参数的不同组合制备试样。

制备之前，首先将 200 目膨润土置于 $(105 \pm 3)^\circ\text{C}$ 的烘箱中，烘干至恒重，按预先设定的含水量，加入蒸馏水均匀湿化，密封 2 d 后用压样机将试样压至预设干密度，加工成直径为 61.1 mm，厚度为 20 mm 的圆柱形试样，一式两块。压好后的试样应即刻进行导热性能测试，以保证测试出的结果尽可能准确。

3. 结果与讨论

3.1. 膨润土的热传导系数

热传导系数反映了材料传递分子热运动的性质[10]。图 2 为不同压实干密度和不同含水量的膨润土的热传导系数，由图可知在相同干密度条件下，随着含水量的增大，热传导系数也随之增大；在相同含水量条件下，随着干密度的增大，热传导系数也是不断增大的。当干密度大于 $1.58 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ 时，膨润土的热传导系数均高于 $0.8 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{k}^{-1}$ 。含水量为 18%，实际干密度为 $1.79 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ 时，热传导系数达到 $1.402 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{k}^{-1}$ 。

从图 3 上可以明显看出热传导系数与孔隙度的关系：在相同含水量条件下，热传导系数随着孔隙度的增大而显著减小；而对于同一孔隙度的膨润土，随着含水量的增大热传导系数也是随之增大的。

图 4 反映了当饱和度大于 20% 时热传导系数与饱和度的关系。每个点代表不同干密度和不同含水量膨润土的热传导系数值，由图可看出热传导系数随饱和度变化的整体趋势是前者随后者的增大而逐渐增大的。当饱和度大于 45.85% 时，热传导系数均高于 $0.8 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{k}^{-1}$ 。热传导系数和饱和度的关系可用下式表示：

$$\lambda = -3.46248e^{(-Sr/149.60423)} + 3.28551 \quad (R^2 = 0.95869)$$

式中： λ 为热传导系数($W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$)； Sr 为饱和度(%)； R 为相关系数。

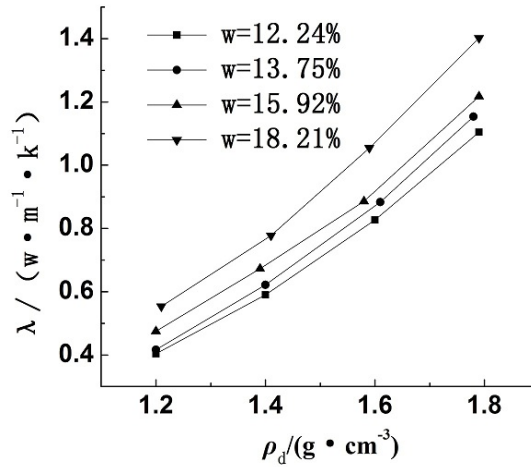


Figure 2. The relationship between thermal conductivity and dry density
图 2. 热传导系数与干密度关系曲线

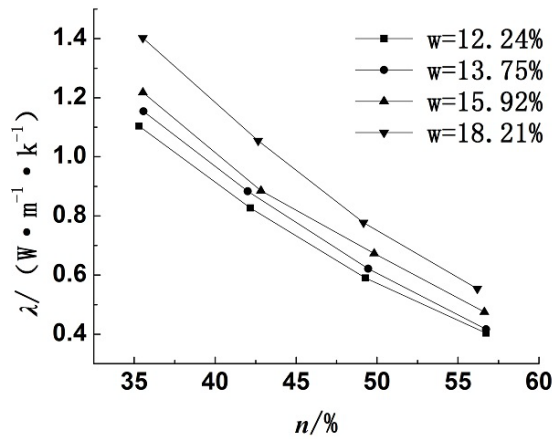


Figure 3. The relationship between thermal conductivity and porosity
图 3. 热传导系数与孔隙度关系曲线

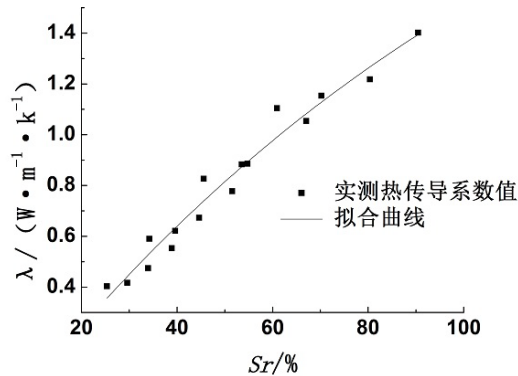


Figure 4. The relationship between thermal conductivity and saturation
图 4. 热传导系数与饱和度关系曲线

3.2. 膨润土的热扩散系数

热扩散系数是反映材料的温度传递能力，热扩散系数越大，热量传递越快。图 5 反映了在不同干密度和不同含水量条件下的热扩散系数。由图可知，在同一干密度条件下，随着含水量的增大，热扩散系数逐渐增大；在同一含水量条件下，随着干密度的增大，热扩散系数显著增大。当含水量为 18%，实际干密度为 $1.79 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ 时，热扩散系数达到 $0.5449 \text{ m}^2\cdot\text{s}^{-1}$ 。

图 6 为热扩散系数与孔隙度的关系曲线，由该图可明显看出：在相同含水量条件下，热扩散系数随孔隙度的增大显著减小；在相同孔隙度条件下，热扩散系数随含水量的增大而略微增大。在孔隙度大于 42% 时，热扩散系数均高于 $0.4 \text{ m}^2\cdot\text{s}^{-1}$ 。

图 7 反映了热扩散系数与饱和度的关系。每个点代表不同干密度和不同含水量膨润土的热扩散系数值，由图可看出热扩散系数随饱和度变化的整体趋势是前者随后者的增大而逐渐增大的。热扩散系数与饱和度的关系可用下式表示：

$$\alpha = -0.73825e^{(-Sr/54.2775)} + 0.69958 (R^2 = 0.91883)$$

式中： α 为热扩散系数($\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$)； Sr 为饱和度(%)； R 为相关系数。

3.3. 膨润土的体积比热

体积比热是表示物质热性质的特有属性。图 8 为不同干密度和不同含水量条件下的比热。从图上可以明显看出：在同一干密度条件下，随着含水量的增大，热扩散系数逐渐增大；在同一含水量条件下，随着干密度的增大，比热显著增大。在含水量为 18%，实际干密度为 $1.79 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ 时，比热达到 $2.574 \text{ MJ}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{k}^{-1}$ 。

图 9 反映了不同含水量条件下比热与孔隙度的关系。由图 8 可知，对于相同含水量的膨润土，比热随着空隙的增大而明显减小；而对于相同孔隙度下的膨润土，比热随着含水量的增大而增大。孔隙度低于 45% 时，比热均高于 $2 \text{ MJ}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{k}^{-1}$ 。

不同干密度和不同含水量的比热与饱和度的关系如图 10 所示。由图可以得出，随着饱和度的增大，膨润土的比热呈现不断增大的趋势。比热与饱和度的关系可用下式表示：

$$c = -2.57e^{(-Sr/93.29)} + 3.51 (R^2 = 0.97615)$$

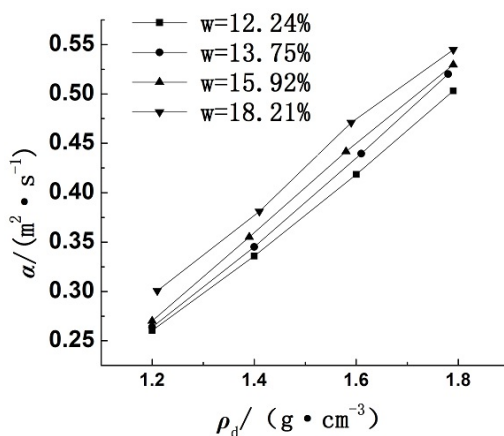


Figure 5. The relationship between thermal diffusivity and dry density
图 5. 热扩散系数与干密度关系曲线

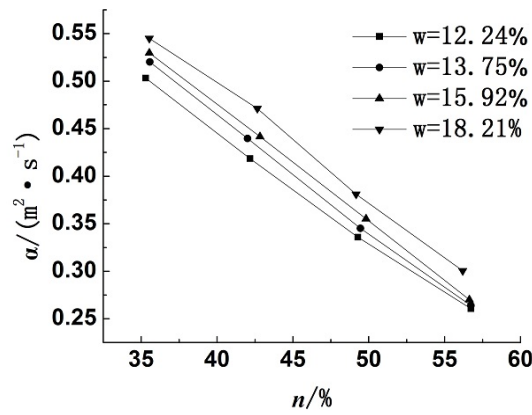


Figure 6. The relationship between thermal diffusivity and porosity
图 6. 热扩散系数与孔隙度关系曲线

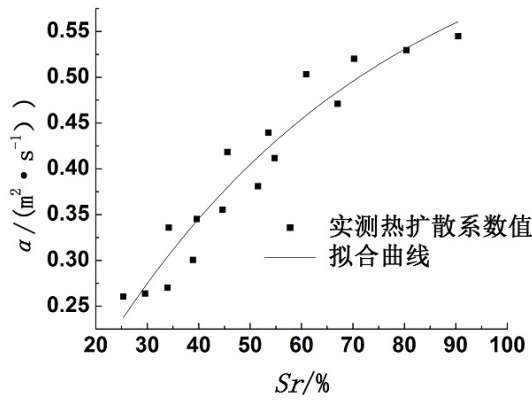


Figure 7. The relationship between thermal diffusivity and saturation
图 7. 热扩散系数与饱和度关系曲线

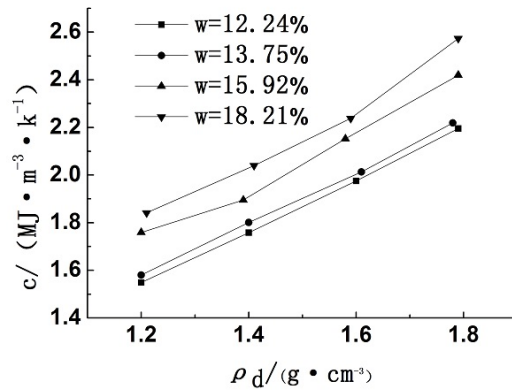


Figure 8. The relationship between specific heat and dry density
图 8. 比热与干密度关系曲线

式中： c 为比热($\text{MJ}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{K}^{-1}$)； Sr 为饱和度(%)； R 为相关系数。

4. 热传导系数的预测

通过试验数据进行拟合得到的热传导系数方程如方程(1)： $\lambda = -3.46248e^{(-Sr/149.60423)} + 3.28551$ 。图 11

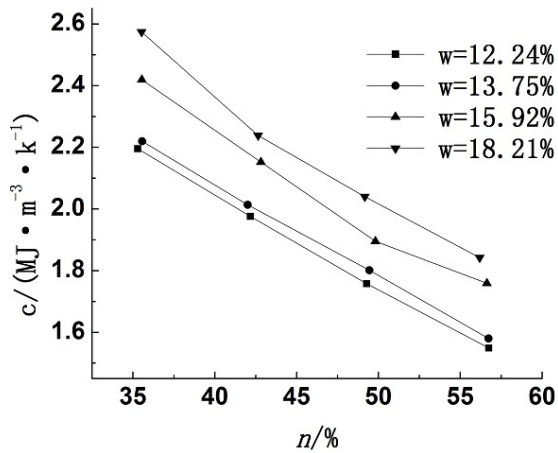


Figure 9. The relationship between specific heat and porosity
图 9. 比热与孔隙度关系曲线

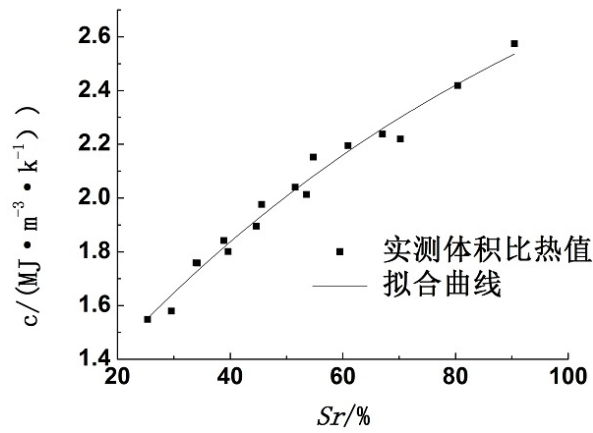


Figure 10. The relationship between specific heat and saturation
图 10. 比热与饱和度关系曲线

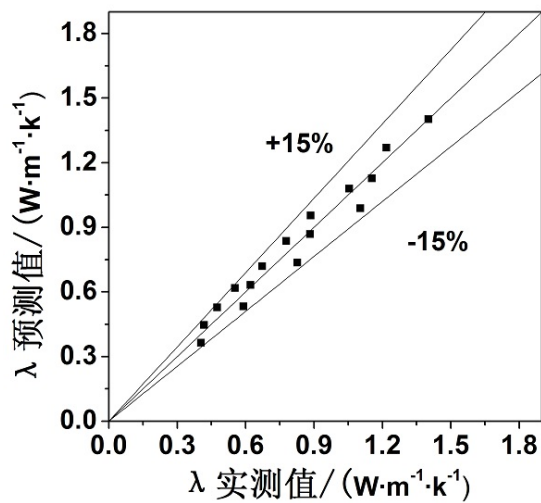


Figure 11. Comparison of predicted and measured values by the experimental equation
图 11. 本试验所得方程预测值与实测值的比较

是用该方程预测的纯膨润土的热传导系数与与本试验实测值的比较结果, 图中 x 轴表示实测值, y 轴表示预测值, $+15\%$ 和 -15% 线分别表示预测值与实测值的误差为 $\pm 15\%$ 。由该图可以明显看出, 用该方程得到的预测值与通过本试验得到的实测值的误差均在 $\pm 15\%$ 以内, 说明该方程可以较好地预测新疆阿尔泰膨润土的热传导系数。

国内外常用的纯膨润土的热传导系数模型有 Kahr 模型、Kuntsson 模型、Sakashita 模型和 Johanson 方法。

Kahr 模型[11]为:

$$\lambda_p = -0.56 + 0.6\rho + 0.4\rho^3 \left[w / (w+1) \right]$$

Kuntsson 模型[12]为:

$$\lambda_p = \lambda_o + K_e (\lambda_1 + \lambda_o)$$

其中:

$$\lambda_o = 0.034n^{-2.1}$$

$$\lambda_1 = 0.562^{(1-n)}$$

$$K_e = 1.0 + \lg Sr$$

Sakashita 模型[13]为:

$$\lambda_p = \lambda_o \left\{ 1 + \left[(9.750n - 0.706) Sr \right]^{0.285n + 0.731} \right\}$$

其中:

$$\lambda_o = 0.0497 + 0.222(1-n) + 0.968(1-n)^3$$

Johanson 方法[14]为:

$$\lambda_p = (\lambda_1 - \lambda_o) K_e + \lambda_o$$

其中:

$$K_e = 1.0 + \lg Sr$$

$$\lambda_1 = K_s^{(1-n)} K_w^n$$

$$\lambda_o = (0.135\rho_d + 64.7) / (\rho_s - 0.947\rho_d)$$

$$K_s = K_q K_o^{1-q}$$

以上式中: λ_p 、 ρ 、 ρ_d 、 ρ_s 、 w 分别为热传导系数预测值、膨润土密度、干密度、土粒密度和含水量。 λ_o 和 λ_1 为饱和度等于 $Sr = 0$ 和 1 时的热传导系数, K_e 为饱和度的函数, 表示饱和度对热传导系数的影响。 K_w 表示水的热传导系数 ($K_w = 0.57 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{k}^{-1}$); K_s 是固体的热传导系数, K_q 是石英的热传导系数 ($K_q = 7.7 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{k}^{-1}$), K_o 是其他矿物的热传导系数 ($K_o = 2.0 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{k}^{-1}$), q 是石英的体积分数。

图 12(a)~(b) 分别是以上 4 种模型预测的纯膨润土的热传导系数与与本试验实测值的比较结果。由图可见, 除了 Kuntsson 模型外, Kahr 模型、Sakashita 模型和 Johanson 方法都能较好地预测阿尔泰膨润土的热传导系数。其中, 用 Kuntsson 模型、Sakashita 模型和 Johanson 方法都较高地预测了该膨润土的导热率, Kuntsson 模型预测值高于实测值的 $15\% \sim 50\%$, Sakashita 模型预测值高于实测值 $0\% \sim 25\%$, Johanson 方法预测值高于实测值 $-5\% \sim 30\%$ 。而 Kahr 模型预测值与实测值相差在 10% 以内, 可见, Kahr 模型能较

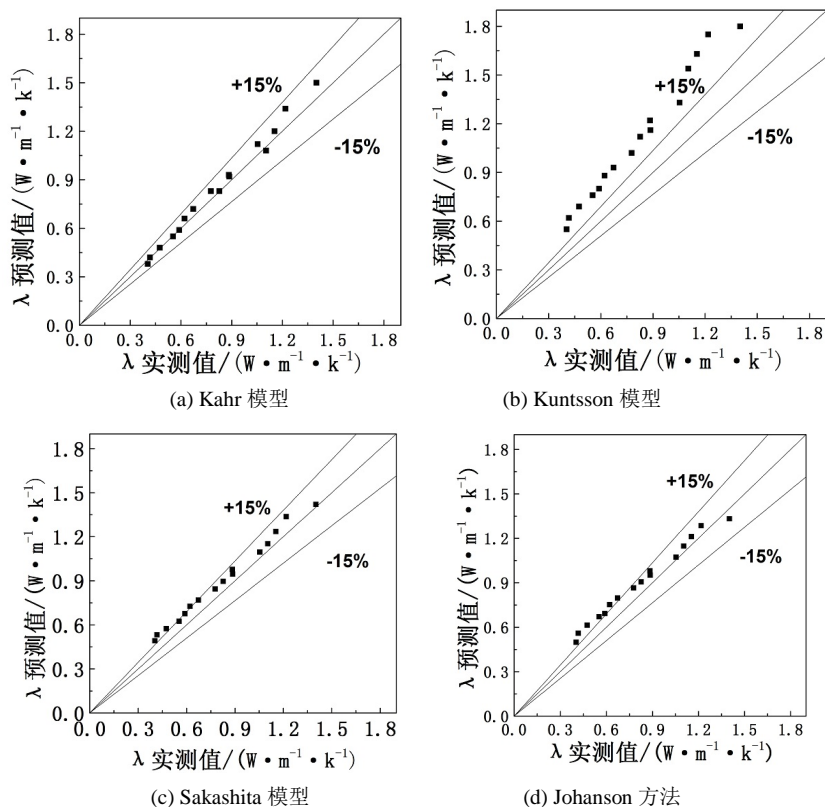


Figure 12. Comparison of predicted and measured values by Kahr's model, Kuntsson's model, Sakashita's model and Johanson's method
图 12. Kahr 模型、Kuntsson 模型、Sakashita 模型和 Johanson 方法预测值与实测值的比较

好得预测阿尔泰膨润土的热传导系数。叶为民等[15]采用几种模型预测了内蒙高庙子膨润土的热传导系数，结果显示用 Kahr 模型预测值和实测值拟合最好，而 Kuntsson 模型、Sakashita 模型预测的结果较好，但相差 20% 以上。这说明了同一模型可能适用于不同的膨润土，但不同的预测模型也可能适合不同的膨润土。

5. 结论

(1) 对于新疆阿尔泰膨润土，当含水量为 12.24~18.21%，干密度大于 1.58 g·cm⁻³ 时，膨润土的热传导系数均高于 0.8 W·m⁻¹·k⁻¹，满足 IAEA 对缓冲回填材料热传导系数的要求。

(2) 同一干密度条件下，热传导系数、热扩散系数和比热随着含水量的增大而增大；同一含水量条件下，热传导系数、热扩散系数和比热均随着干密度的增大而显著增大。在相同含水量条件下，热传导系数、热扩散系数和比热随着孔隙度的增大而减小。出现以上现象是由于干密度的增大会导致孔隙度的减小，含水量的增大会导致孔隙中空气的量相对减少，而膨润土和水的导热性均远远大于空气的导热性能所致。

(3) 阿尔泰膨润土的饱和度大于 20% 时，热传导系数、热扩散系数和比热均与随饱和度的增大而增大，并通过拟合分别得到了传导系数、热扩散系数、比热与饱和度的关系方程。

(4) 用几种模型进行拟合，通过比较，得到本试验所得方程与 Kahr 模型预测的新疆阿尔泰膨润土热传导系数与实测值拟合较好，可用于新疆阿尔泰膨润土热传导系数的预测。

基金项目

国家自然科学基金项目(41402248); 四川省教育厅科技创新团队项目(12zd1106); 固体废物处理与资源化教育部重点实验室开放基金项目(12zxgk11); 非金属复合与功能材料科技部重点实验室开放基金项目(11zxfk06); 核废物与环境安全国防重点学科实验室团队基金项目(13zxnk08); 核废物与环境安全四川省协同创新中心预研基金项目(15yyhk03); 西南科技大学重点科研平台专职科研创新团队基金(14tdhk01); 四川省教育厅一般项目。

参考文献 (References)

- [1] 叶为民, 王琼, 陈永贵, 等 (2010) 缓冲/回填材料——砂 - 膨润土混合物研究进展. *铀矿地质*, **2**, 95-100.
- [2] 陈巧红, 易发成, 张涛 (2012) 集成回填材料的土水特征曲线测定. *水文地质工程地质*, **3**, 124-128.
- [3] 刘月妙, 徐国庆, 刘淑芬, 等 (2001) 内蒙古高庙子膨润土基本性能研究. 中国核工业音像出版社, 北京.
- [4] 沈珍瑶, 李国鼎, 李书绅 (1998) 高压实膨润土渗透性试验研. *大坝观测与土工测试*, **3**, 39-40.
- [5] 刘月妙, 蔡美峰, 王驹 (2006) 内蒙古高庙子钠基膨润土导热性能研究. In: 王驹, Ed., *第二届全国岩土与工程学术大会论文集 (下册)*, 核工业北京地质研究院, 北京, 742-746.
- [6] 谢敬礼, 刘月妙, 周宏伟 (2010) 砂 - 膨润土混合物热传导特性研究. In: 王驹, Ed., *第三届废物地下处置学术研讨会论文集*, 核工业北京地质研究院, 北京, 439-444.
- [7] 崔玉军, 陈宝 (2006) 高放核废物地质处置中工程屏障研究新进展. *岩石力学与工程学报*, **4**, 842-847.
- [8] Pacovsky, J. (2002) Some results from geotechnical research on bentonite. In: Konvalinka, P., Lxemburk, F., Eds., *CTU Reports—Experimental Investigation of Building Materials and Technologies*, Burges, 107-116.
- [9] Tang, A.-M., Cui, Y.-J. and Le, T.-T. (2008) A study on the thermal conductivity of compacted bentonites. *Applied Clay Science*, **41**, 181-189. <http://dx.doi.org/10.1016/j.clay.2007.11.001>
- [10] 刘月妙, 蔡美峰, 王驹 (2007) 高放废物处置库缓冲材料导热性能研究. *岩石力学与工程学报*, **S2**, 3891-3896.
- [11] Kahr, G. and Müller-Vonmoos, M. (1982) Thermal conductivity of MX80 bentonite and Montigel after hot-wire. Swiss National Cooperative for the Disposal of Radioactive Waste, NAGRA Technischer Bericht, Zurich.
- [12] Knutsson, S. (1983) On the thermal conductivity and thermal diffusivity of highly compacted bentonite. Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co. SKB, Stockholm, 83-72.
- [13] Sakashita, H. and Kumada, T (1998) Heat transfer model for predicting thermal conductivity of highly compacted bentonite. *Journal of Japan Atomic Society*, **40**, 235-240. <http://dx.doi.org/10.3327/jaesj.40.235>
- [14] Johansen, O. (1975) Thermal conductivity of soils. Ph.D. Thesis, Trondheim, Norway.
- [15] 叶为民, 王琼, 潘虹, 等 (2010) 高压实高庙子膨润土的热传导性能. *岩土工程学报*, **6**, 821-826.