DOI: 10.25283/2587-9707-2021-4-78-88 УДК 621.039.743; 552.523; 532.546.3

ДЕФОРМАЦИЯ И ФИЛЬТРАЦИЯ В ГЛИНИСТЫХ МАТЕРИАЛАХ ДЛЯ ЗАЩИТНЫХ БАРЬЕРОВ РАДИАЦИОННО ОПАСНЫХ ОБЪЕКТОВ

К. В. Мартынов, В. О. Жаркова, Е. В. Захарова

Институт физической химии и электрохимии им. А. Н. Фрумкина РАН, Москва

Статья поступила в редакцию 01 октября 2021 г.

Методом компрессионных испытаний изучены одномерная деформация в сухом и водонасыщенном состояниях и напорная фильтрация в образцах дисперсных материалов, предназначенных для создания противофильтрационных барьеров и изготовленных из каолиновых, полиминеральной и бентонитовых глин и их смесей. Построены зависимости деформации, давления набухания, капиллярного всасывания и коэффициентов фильтрации от плотности скелета (сухой плотности) для изученных образцов. Подтверждена тенденция для материалов, содержащих каолинит, к уплотнению, а монтмориллонит — к набуханию. Компрессионные характеристики материала из полиминеральной глины и смешанных материалов не всегда зависят только от минерального состава. Давление набухания проявляется у материалов из бентонитовых и полиминеральной глин и практически отсутствует у материалов из каолинов и их смесей с 30 масс. % бентонита. Коэффициенты фильтрации материалов повышаются с увеличением отношения содержаний каолинита и монтмориллонита, а для смешанных — проявляют аддитивность.

Ключевые слова: *радиоактивные отходы, противофильтрационный барьер, каолин, бентонит, эффективное давление, плотность скелета, одометр, деформация, давление набухания, капиллярное всасывание, коэффициент фильтрации.*

Для ограничения распространения радиационного загрязнения из пунктов захоронения радиоактивных отходов (ПЗРО) и консервации радиационно опасных объектов сооружаются защитные барьеры из глинистых материалов. Они должны выполнять три функции: обеспечивать достаточную механическую устойчивость конструкции сооружения и самого барьера, исключать возможность адвекционного переноса радионуклидов благодаря низкой водопроницаемости барьерных материалов, задерживать диффузионный перенос сорбирующихся и несорбирующихся радионуклидов. Для обеспечения двух первых функций важнейшими показателями являются характеристики деформации и напорной фильтрации материалов.

Они активно изучаются зарубежными исследователями [1, 2]. Однако, за редким исключением [3], их внимание привлекают преимущественно уплотненные материалы на основе бентонитовых глин. В отечественной практике имеется опыт использования дисперсных смешанных материалов на основе промышленных каолиновых глин с добавкой бентонитов, а также полиминерального местного глинистого сырья [4]. В любом случае свойства дисперсных материалов, даже близких по минеральному составу, зависят от источника сырья и технологии его

переработки, включающей смешивание, сушку, помол и сортировку по размеру частиц (классификацию) [5], поэтому для обоснования безопасности каждого объекта важно знать свойства конкретных материалов, которые могут использоваться при его сооружении.

Целью настоящего исследования является изучение компрессионно-фильтрационных характеристик некоторых глинистых материалов из сырья промышленных месторождений различных по минеральному составу глин, используемых на объектах Госкорпорации «Росатом» и потенциально пригодных для создания барьеров безопасности.

Объекты и методы исследования

Были изучены образцы дисперсных материалов, приготовленных из глин различного минерального состава: белого каолина (КГПО-23) и черной тугоплавкой каолиновой глины (Т-2) Кампановского месторождения, полиминеральной глины Кантатского месторождения (КК), восковидного бентонита Камалинского месторождения (ВБ) (все — Красноярский край), бентонита месторождения 10-й Хутор (ХБГП) (Республика Хакасия), а также смесей хакасского бентонита с каолиновыми глинами в соотношении 30 : 70 масс. %. Материалы КГПО-23, Т-2, ХБГП являются промышленными продуктами, остальные, включая смеси, были подготовлены в лаборатории. Содержание кристаллических фаз в образцах (табл. 1) определялось методом рентгенографического количественного фазового анализа (РКФА) на рентгеновском дифрактометре X-pert Pro (PANalytical, Нидерланды).

Таблица 1. Минеральный состав изученных материалов по данным РКФА, масс. %

Материал	Монтмориллонит	Каолинит	Иллит	Кварц	Полевые шпаты	Карбонаты	Прочие*
КГПО-23	5	48	2	27	10	2	6
Т-2	8	39	5	36	7	1	4
КК	15	24	5	25	11	2	18
ВБ	76	4	1	16	3	–	–
ХБГП	71	4	1	12	9	3	–
Б30К70	33	41	2	12	11	1	–
Б30Т70	35	32	2	28	2	1	–
Б30КК70	36	35	2	22	4	1	–

*Включая аморфное вещество.

Параметры деформации и напорной фильтрации образцов под нагрузкой определялись при комнатной температуре методом компрессионного сжатия по ГОСТ 12248.4-2020 [6] и фильтрационных испытаний по ГОСТ 25584-2016 [7] в условиях одномерной деформации на автоматизированном испытательном комплексе АСИС (НПП «Геотек», Пенза) [8], включенном в Госреестр СИ ФИФ ОЕИ за № 61952-15. Прибор обеспечивает осевую статическую нагрузку до 50 кН, подачу до 250 см^3 жидкости в фильтрационный одометр размером 71,5 × 20,5 мм, оснащенный датчиком величины линейной деформации образца, контроль давления жидкости в нагнетателе в пределах 2 МПа и измерение объема фильтрата. Все измерительные датчики имеют установленные в паспорте погрешности и подлежат ежегодной поверке. Управляющая программа позволяет полностью автоматизировать контроль за ходом экспериментов и регистрацию результатов.

Методика экспериментов и расчета деформационных и фильтрационных характеристик описана в работах [8—10]. Исходные образцы представляли собой дисперсные материалы с влажностью 3—8 масс. %, которая определялась по ГОСТ 5180-2015 [11]. Водонасыщение образцов проводилось непосредственно в одометре компрессионно-фильтрационного прибора при минимально достаточных для фильтрации осевой нагрузке и давлении воды в нагнетателе до прекращения деформации образца и достижения стационарной фильтрации. В отличие от метода капиллярного всасывания, это гарантирует 100-процентное водонасыщение образцов.

Использованный компрессионно-фильтрационный прибор позволял изучать деформацию образцов как в режиме повышения нагрузки (компрессия), так и в режиме ее понижения (декомпрессия), что облегчает определение такой важной компрессионной характеристики, как давление набухания. Оба типа компрессионных испытаний проводились со ступенчатым изменением нагрузки. Важное значение при выборе режима перехода на очередную ступень нагрузки имеет критерий стабилизации деформации. Для изученных образцов в качестве критерия прекращения деформации экспериментальным методом было установлено значение 0,01 мм в течение 30 минут.

Измеренная характеристика — линейная деформация образца — через массу скелета, определенную с учетом исходной влажности (масса твердых частиц, то есть масса образца за вычетом поровой воды, или сухая масса), пересчитывалась в изменение плотности скелета образца ($\rho_т$, г/см^3). Этот параметр характеризует объемную деформацию материала, что более удобно для описания свойств глиняных

защитных барьеров, чем линейная деформация и ее производные: коэффициент сжимаемости и модуль деформации, предусмотренные в ГОСТ 12248.4-2020. Эти характеристики для описания свойств барьерных материалов использовать тем более проблематично, так как деформация глинистых материалов имеет нелинейную зависимость от давления на скелет [12].

Для графического представления деформации глинистых материалов компрессионные кривые для исследованных образцов можно изображать на прямых или перевернутых графиках зависимости изменения плотности скелета ($\rho_т$) от давления на скелет ($P_т$). В последнем случае компрессионные кривые, в том числе описывающие такие важные характеристики, как давление набухания и капиллярное всасывание, можно представить, как функции от плотности скелета [9] (рис. 1).

При отсутствие порового давления, давление на скелет соответствует осевому давлению на образец ($P_о$). При наличии градиента порового давления (при фильтрационных испытаниях давление жидкости на выходе из одометра равно атмосферному), давление на скелет соответствует эффективному давлению ($P_э$):

$$P_т = P_э = P_о - P_ж/2,$$

где $P_ж$ — давление в нагнетателе.

Кривые компрессии для сухого (КСМ) и водонасыщенного (КВМ) материала (рис. 1а) соответствуют кривым деформации, описанным степенными функциями (рис. 1б). На деформацию и фильтрацию в глинистых материалах сильное влияние оказывают набухание смектитовых минералов (монтмориллонита) в присутствии воды и взаимодействие поверхности глинистых минералов с поровой водой, вызывающее эффект капиллярного всасывания. Физическая основа этих явлений хорошо проиллюстрирована в работе [2], а результаты изменения компрессионно-деформационных характеристик — в работе [13].

Так же как деформационные кривые, набухание и капиллярное всасывание описываются с помощью зависимостей давления набухания и капиллярного давления от плотности скелета, которые могут быть получены из компрессионных кривых и аппроксимированы степенными функциями [9] (рис. 1б). Давление набухания ($P_н$) соответствует кривой декомпрессии водонасыщенного материала (ДВМ) на участке, где происходит увеличение объема, то есть уменьшение плотности скелета образца (рис. 1а):

$$P_н = P_{ДВМ}.$$

Капиллярное давление (всасывание) ($P_{вс}$) равно смещению компрессионной кривой по оси давления при водонасыщении образца с учетом давления набухания:

$$P_{вс} = P_{КСМ} - P_{КВМ} + P_{ДВМ}.$$

Такая интерпретация отражает влияние компрессионных эффектов, вызванных разными силами, на скелет материала. Нагрузка на образец вызывает сжатие — положительную деформацию. В том же направлении действуют капиллярные силы. Набухание, напротив, приводит к расширению — отрицательной деформации скелета.

Методика проведения фильтрационных испытаний глинистых материалов и расчета характеристик достаточно подробно описана в работах [8, 10]. Для определения коэффициента фильтрации воды — главного показателя — проводились по две-три серии экспериментов

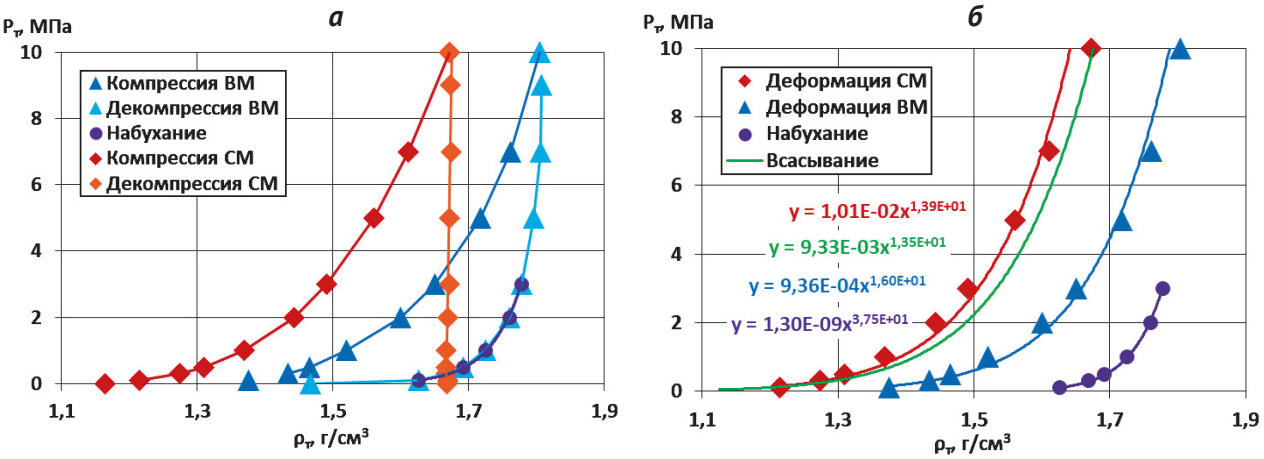

Рис. 1. Компрессионные кривые для сухого (СМ) и водонасыщенного (ВМ) образцов материала из кантатской полиминеральной глины КК в режимах компрессии и декомпрессии (а) и зависимости компрессионных характеристик от плотности скелета (б)

с несколькими образцами материала при различных нагрузках и напорах для каждого образца, выбираемых так, чтобы перекрыть возможный диапазон вариации плотности скелета материала в защитном барьере. Объем фильтрата, достаточный для надежной оценки коэффициента фильтрации, должен составлять не менее одного порового объема образца, то есть для стандартного одометра — 10—20 см³ для разных по плотности скелета материалов. Для малопроницаемых материалов, в зависимости от значений нагрузки и напора, один эксперимент может продолжаться от нескольких недель до нескольких месяцев, для того чтобы набрать необходимый объем фильтрата. По объему жидкости V (см³), профильтрованной за время t (с), исходя из модели Дарси для одномерной фильтрации, рассчитывался коэффициент фильтрации (м/с):

$$K_ф = (V \cdot L \cdot \rho_ж) / (t \cdot S \cdot \Delta P_ж),$$

где L — толщина образца (см), $\rho_ж$ — плотность жидкости (для воды при комнатной температуре — 1 г/см³), S — площадь сечения образца (см²), $\Delta P_ж$ — перепад порового давления в образце. Необходимым условием корректности полученных данных для расчета коэффициента фильтрации по уравнению Дарси является соблюдение стационарного режима.

Для графического представления коэффициентов фильтрации использовались зависимости от плотности скелета материалов, которые аппроксимировались экспоненциальными функциями. Такое представление позволяет прогнозировать значение коэффициента фильтрации для барьера исходя из ожидаемой плотности материала в барьере.

Кроме определения собственно фильтрационных характеристик, эти испытания дают возможность получить данные о деформации водонасыщенных материалов в виде зависимости плотности скелета от эффективного давления (давления на скелет образца). Поскольку фильтрационные эксперименты, как правило, гораздо более продолжительны, чем компрессионные испытания, кривые деформации, полученные этими методами, несколько различаются, причем результаты для образцов в фильтрационных экспериментах гораздо ближе к равновесному состоянию.

Результаты и обсуждение

Характеристики деформации для изученных материалов по результатам компрессионных испытаний показаны на рис. 2, а уравнения аппроксимирующих эти характеристики кривых представлены в табл. 2. Зависимости компрессионных характеристик аппроксимированы степенными функциями.

Водонасыщение для всех материалов приводит к заметной объемной деформации: плотность скелета при равной нагрузке возрастает примерно на 0,1 г/см³ у бентонитовых материалов и на 0,2 г/см³ у каолиновых материалов и смесей (рис. 2а и 2б).

Каолиновые материалы (КГПО-23, Т-2) с преобладанием каолинита над другими глинистыми минералами как в сухом, так и в водонасыщенном состоянии под давлением уплотняются лучше, чем бентонитовые (ВБ, ХБГП), в которых главным минералом является монтмориллонит. Компрессионные кривые (деформация и набухание) материалов из смесей бентонитовой и каолиновых глин (Б30К70, Б30Т70) практически совпадают с кривыми для их каолиновой составляющей. Таким образом, добавка к изученным каолиновым глинам до 30 масс.% бентонита практически не меняет их деформационные характеристики, несмотря на то, что содержание монтмориллонита в смесях практически сравнивается с содержанием каолинита.

Таблица 2. Зависимости компрессионных характеристик изученных материалов от плотности скелета ($\rho_т$, г/см³) по результатам компрессионных испытаний

Материал	$P_{КСМ}$, МПа	$P_{КВМ}$, МПа	$P_н$, МПа	$P_{вс}$, МПа
КГПО-23	$1{,}05 \cdot 10^{-3} \rho_т^{17{,}9}$	$1{,}53 \cdot 10^{-6} \rho_т^{25{,}1}$	$1{,}08 \cdot 10^{-18} \rho_т^{67{,}4}$	$1{,}08 \cdot 10^{-3} \rho_т^{17{,}7}$
Т-2	$2{,}93 \cdot 10^{-3} \rho_т^{15{,}7}$	$2{,}97 \cdot 10^{-5} \rho_т^{19{,}0}$	$3{,}84 \cdot 10^{-12} \rho_т^{41{,}5}$	$2{,}94 \cdot 10^{-3} \rho_т^{15{,}6}$
КК	$1{,}01 \cdot 10^{-2} \rho_т^{13{,}9}$	$9{,}36 \cdot 10^{-4} \rho_т^{16{,}0}$	$1{,}3 \cdot 10^{-9} \rho_т^{37{,}5}$	$9{,}33 \cdot 10^{-3} \rho_т^{13{,}5}$
ВБ	$2{,}03 \cdot 10^{-2} \rho_т^{15{,}6}$	$5{,}81 \cdot 10^{-3} \rho_т^{16{,}4}$	$7{,}39 \cdot 10^{-9} \rho_т^{43{,}9}$	$1{,}39 \cdot 10^{-2} \rho_т^{15{,}4}$
ХБГП	$7{,}26 \cdot 10^{-2} \rho_т^{13{,}7}$	$2{,}59 \cdot 10^{-2} \rho_т^{13{,}6}$	$2{,}12 \cdot 10^{-4} \rho_т^{22{,}3}$	$6{,}29 \cdot 10^{-2} \rho_т^{13{,}0}$
Б30К70	$3{,}85 \cdot 10^{-3} \rho_т^{14{,}9}$	$2{,}17 \cdot 10^{-4} \rho_т^{16{,}8}$	$6{,}56 \cdot 10^{-10} \rho_т^{35{,}2}$	$3{,}68 \cdot 10^{-3} \rho_т^{14{,}7}$
Б30Т70	$3{,}34 \cdot 10^{-3} \rho_т^{14{,}9}$	$6{,}14 \cdot 10^{-4} \rho_т^{14{,}6}$	$6{,}41 \cdot 10^{-10} \rho_т^{34{,}3}$	$2{,}72 \cdot 10^{-3} \rho_т^{15{,}0}$
Б30КК70	$3{,}46 \cdot 10^{-2} \rho_т^{13{,}2}$	$4{,}65 \cdot 10^{-3} \rho_т^{15{,}1}$	$2{,}5 \cdot 10^{-6} \rho_т^{28{,}0}$	$2{,}76 \cdot 10^{-2} \rho_т^{13{,}2}$

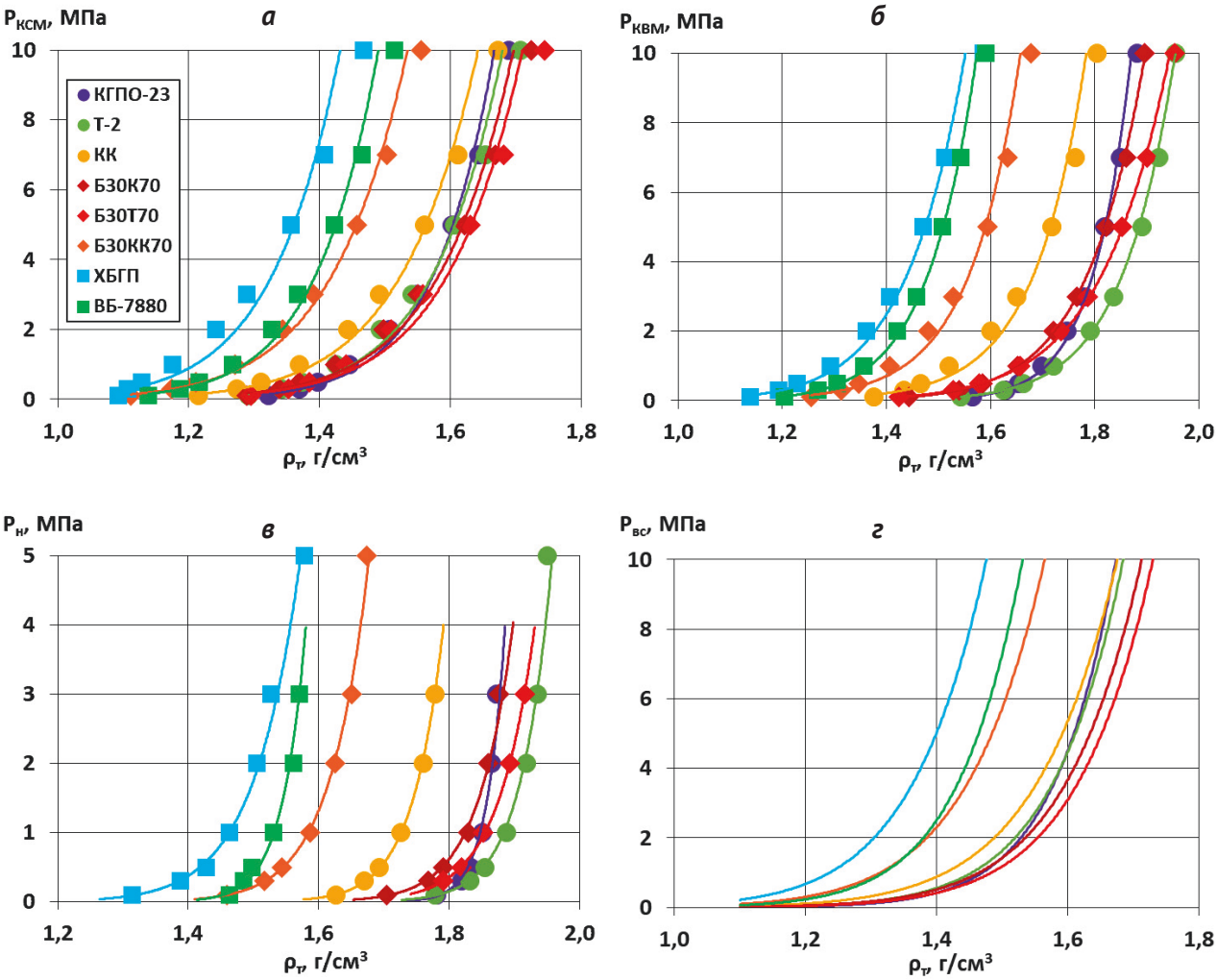

Рис. 2. Зависимости давления деформации глинистых материалов в сухом (а) и водонасыщенном (б) состояниях, давления набухания (в) и давления капиллярного всасывания (г) от плотности скелета по результатам компрессионных испытаний: символы — экспериментальные данные, кривые — аппроксимация функциями из табл. 2

В то же время кантатский каолин (КК), являющийся полиминеральной глиной с соотношением монтмориллонита и суммы каолинита и иллита 1:2, по компрессионным характеристикам заметно отличается от каолиновых материалов КГПО-23 и Т-2. Его компрессионные кривые занимают промежуточное положение между каолиновыми и бентонитовыми материалами. Еще больше смещаются в сторону бентонитовых материалов компрессионные кривые для смеси кантатского каолина с хакасским бентонитом (Б30КК70), демонстрируя аддитивность ее компрессионных характеристик. В этой смеси, так же как в других, монтмориллонит и каолинит присутствуют примерно в равных количествах. Таким образом, компрессионные характеристики смешанных материалов зависят не только от их минерального состава и не всегда могут быть рассчитаны как средневзвешенные значения.

В глиняном барьере давление набухания может возникнуть после водонасыщения, если при его создании материалы были уплотнены до значений, превышающих насыпную плотность, либо использовались предварительно уплотненные материалы. Из сравнения характеристик деформации в сухом состоянии (рис. 2а) видно, что при равном давлении предварительного сухого уплотнения для бентонитовых и каолиновых материалов достижимы разные плотности скелета. При давлении уплотнения 10 МПа они соответствуют примерно 1,5 г/см^3 для бентонитовых материалов ВБ и ХБГП и 1,7 г/см^3 — для каолиновых материалов КГПО-23 и Т-2 и их смесей с бентонитом. Для бентонитовых материалов такая плотность скелета при водонасыщении соответствует значениям давления набухания 0,5—1,5 МПа, а для каолиновых и смешанных с ними материалов — ниже 0,1 МПа (рис. 2в). Материал из кантатской полиминеральной глины (КК) при тех же условиях будет иметь давление набухания немного ниже, чем у бентонитовых материалов, — 0,4 МПа, а его смесь с бентонитом (Б30КК70) — 0,8 МПа при плотности скелета 1,55 г/см^3.

Капиллярное давление (всасывание) при равной плотности скелета для бентонитовых материалов выше, чем для каолиновых материалов и смесей (рис. 2г). Однако с учетом отличий в деформации материалов в условиях равных нагрузок, которые приводят к различиям плотности скелета, соотношение капиллярного давления в материалах разного состава может быть иным: равным или даже более высоким для каолиновых материалов. Важно, что для всех типов материалов капиллярное давление превышает давление деформации при одинаковых значениях плотности скелета. Из этого следует, что фильтрация газа через водонасыщенные глинистые материалы невозможна. Газ ни при каких условиях не сможет выдавить поровую воду, так как для этого нужно превысить капиллярное давление, а это исключено, поскольку деформация материала всегда будет происходить при давлении на водонасыщенный материал более низком, чем капиллярное давление.

Коэффициенты фильтрации и зависимости плотности скелета от эффективного давления для изученных материалов по результатам фильтрационных испытаний показаны на рис. 3, а уравнения аппроксимирующих эти данные кривых представлены в табл. 3. Зависимости коэффициентов фильтрации аппроксимированы экспоненциальными функциями, кривые деформации — степенными. Больший разброс экспериментальных точек по результатам фильтрационных экспериментов по сравнению с компрессионными связан с тем, что во втором случае данные получаются из серии испытаний одного образца, а в первом — из нескольких серий с разными образцами. Таким образом, на результаты влияет как неоднородность образцов, так и воспроизводимость экспериментов.

Коэффициенты фильтрации для всех изученных материалов проявляют зависимость от минерального состава, а для смесей — аддитивность по отношению к смешиваемым глинам. Чем больше в материале отношение содержаний монтмориллонита и каолинита, тем ниже значения коэффициента фильтрации. Для бентонитовых материалов при плотности скелета 1,3 г/см^3, которая доступна при минимальном уплотнении при засыпке барьера после его насыщения водой, значения $K_ф$ ниже $5\cdot10^{-12}$ м/с, для смесей Б30КК70, Б30Т70 и материала из кантатской глины КК при плотности скелета 1,7 г/см^3 значения $K_ф$ не превышают 10^{-11} м/с, а для смеси Б30К70 и каолиновых материалов при той же плотности скелета они находятся в диапазоне $(2—6)\cdot10^{-11}$ м/с (рис. 3а).

Таблица 3. Зависимости коэффициента фильтрации от плотности скелета ($\rho_т$, г/см^3) и плотности скелета от эффективного давления ($P_э$, МПа) для изученных материалов по результатам фильтрационных испытаний

Материал	$K_ф$, м/с	$\rho_т$, г/см^3
КГПО-23	$2{,}34\cdot10^3e^{3{,}55\rho_т}$	$1{,}81P_э^{0{,}09}$
Т-2	$1{,}71\cdot10^4e^{5{,}42\rho_т}$	$1{,}79P_э^{0{,}107}$
КК	$2{,}25\cdot10^3e^{4{,}41\rho_т}$	$1{,}49P_э^{0{,}218}$
ВБ	$7{,}38\cdot10^5e^{11{,}0\rho_т}$	$1{,}31P_э^{0{,}097}$
ХБГП	$6{,}08\cdot10^4e^{9{,}24\rho_т}$	$1{,}28P_э^{0{,}15}$
Б30К70	$5{,}6\cdot10^4e^{5{,}95\rho_т}$	$1{,}79P_э^{0{,}101}$
Б30Т70	$9{,}21\cdot10^4e^{7{,}16\rho_т}$	$1{,}68P_э^{0{,}118}$
Б30КК70	$1{,}3\cdot10^3e^{4{,}8\rho_т}$	$1{,}48P_э^{0{,}206}$

Все эти значения укладываются в пределы, обозначенные в требованиях к барьерным материалам для Новоуральского ПЗРО ФГУП «НО

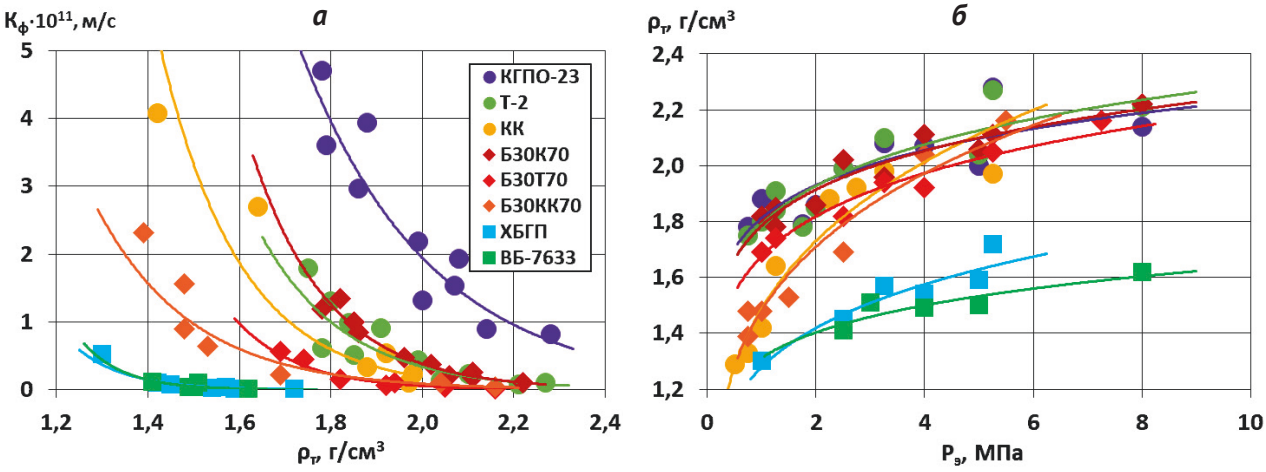

Рис. 3. Зависимости коэффициента фильтрации от плотности скелета (а) и плотности скелета от эффективного давления (б) для глинистых материалов в водонасыщенном состоянии по результатам фильтрационных испытаний: символы — экспериментальные данные, кривые — аппроксимация функциями из табл. 3

РАО» 3 и 4 классов (10^{-10} м/с) и для объектов консервации выведенных из эксплуатации промышленных уран-графитовых реакторов (ПУГР) ФГУП «ГХК», г. Железногорск ($5 \cdot 10^{-11}$ м/с) [14]. В отношении глубинного ПЗРО 1 и 2 классов, строительство которого планируется на глубине 500 м в горном массиве вблизи г. Железногорска, требования к барьерным материалам пока не определены. По экспериментальным данным поровая проницаемость гнейсов и амфиболитов, аналогичных породам, вмещающим этот объект, составляет не менее 10^{-18} м^2 [15]. В условиях глубинного ПЗРО это соответствует коэффициенту фильтрации для воды 10^{-11} м/с. Очевидно, что создание барьеров, для которых этот показатель ниже, чем у самих вмещающих пород, не имеет смысла, тем более что подземная вода в массиве циркулирует не через поровое пространство пород, а по открытым трещинам и коэффициент фильтрации при этом находится в диапазоне 10^{-4}—10^{-2} м/сутки [16], то есть минимально 10^{-9} м/с. Запас надежности в два десятичных порядка вполне достаточен для обеспечения безопасности объекта. Таким образом, и бентонитовые, и смешанные материалы Б30КК70, Б30Т70, и даже материал из кантатской полиминеральной глины КК по величине $K_ф$ при соответствующем уплотнении вполне пригодны для сооружения барьеров безопасности глубинного ПЗРО 1 и 2 классов.

Кривые деформации по результатам фильтрационных испытаний (рис. 3б) для разных материалов соответствуют данным, полученным прямым компрессионным методом (рис. 2б). По характеру деформации изученные материалы разделяются на три группы: самые плотные — каолиновые материалы и смеси с ними, самые малоплотные — бентонитовые материалы, а материалы из полиминеральной глины и ее смеси с бентонитом имеют промежуточные значения плотности скелета. Однако все кривые деформации по результатам фильтрационных испытаний смещены в сторону более высоких плотностей скелета, то есть в сторону увеличения деформации, и имеют менее крутой наклон относительно оси плотности. Последнее особенно сильно проявляется для материалов из полиминеральной глины КК: при невысоких нагрузках плотность их скелета ближе к бентонитовым материалам, а при высоком давлении на скелет их деформация приближается к характерной для каолиновых материалов.

Эффект смещения и выполаживания компрессионных кривых, полученных при фильтрационных испытаниях, связан с существенно большей продолжительностью этих экспериментов по сравнению с компрессионными испытаниями, то есть с увеличением времени на релаксацию после приложения нагрузки. В результате этого достигается более близкое к равновесному состояние системы. Этот эффект, вызванный недостаточным временем для релаксации напряжений при компрессионных испытаниях, проявляется при определении других компрессионных характеристик: давления набухания по кривой декомпрессии и капиллярного давления по разнице деформации и набухания. Чем выше нагрузка, тем больше времени требуется на релаксацию, поэтому определение критерия прекращения деформации, о котором говорилось при описании методики испытаний, особенно для водонасыщенных образцов, имеет важнейшее значение для получения корректных результатов. Однако нужно понимать, что речь может идти только о минимизации систематической ошибки при компрессионных испытаниях. В реальных условиях проведения таких экспериментов временные затраты на каждую ступень нагрузки, сопоставимые с продолжительностью фильтрационных испытаний, нецелесообразны. Для сухих образцов описанный эффект, скорее всего, незначителен, так как релаксация достигается достаточно быстро.

В заключение следует заметить, что аппроксимация компрессионных и фильтрационных характеристик степенными и экспоненциальными уравнениями из табл. 2 и 3 не несет физического смысла, а служит для удобства расчета этих характеристик в пределах экспериментально изученных значений, то есть их интерполяции. Экстраполяция характеристик за эти пределы возможна на очень ограниченный диапазон вариации значений как аргументов, так и функций. Попытки дальней экстраполяции могут оказаться совершенно некорректными.

Выводы

Плотности скелета для бентонитовых и каолиновых материалов различаются как в сухом, так еще больше в водонасыщенном состоянии. Максимальный скачок уплотнения происходит при водонасыщении за счет взаимодействия воды с поверхностью глинистых минералов. Компрессионные характеристики смесей бентонитовых и каолиновых материалов (Б30К70, Б30Т70) не проявляют аддитивности, а смещаются в сторону более плотной каолиновой составляющей. Однако для смешанного материала Б30КК70 из хакасского бентонита и кантатской полиминеральной глины, имеющего близкий к бентонит-каолиновым материалам минеральный

состав, проявляется аддитивность компрессионных свойств. Это свидетельствует о том, что компрессионные свойства зависят не только от соотношения каолинита, монтмориллонита и обломочных минералов в материале, но также и от структурных особенностей (формы, размера и др.) слагающих материал глинистых и неглинистых минералов, то есть от генезиса (происхождения) глинистого минерального сырья, и технологии подготовки барьерного материала.

Давление набухания имеет заметные значения для бентонитовых материалов, материалов из полиминеральной кантатской глины и ее смеси с хакасским бентонитом. Для кампановских каолиновых материалов и их смесей с 30 масс.% хакасского бентонита давление набухания при реально достижимых плотностях скелета не проявляется. Для изученных глинистых материалов капиллярное давление превышает давление деформации при равных значениях плотности скелета. Из этого следует, что фильтрация газа через водонасыщенные глинистые материалы невозможна.

Коэффициенты фильтрации для всех изученных материалов при условии минимального уплотнения при засыпке удовлетворяют требованиям к приповерхностным ПЗРО 3 и 4 классов и объектам консервации ПУГР (не более $5 \cdot 10^{-11}$ м/с), а для материалов из бентонитовых, полиминеральной глин и смесей хакасского бентонита с каолинами Б30КК70 и Б30Т70 — не превышают 10^{-11} м/с, что должно быть достаточно для глубинного ПЗРО 1 и 2 классов.

Кривые деформации глинистых материалов по результатам фильтрационных экспериментов ближе к равновесному состоянию, чем по результатам компрессионных испытаний водонасыщенных материалов. Разница увеличивается при повышении нагрузки на скелет образца. Для минимизации систематической ошибки компрессионного метода при его использовании важное значение имеет правильный выбор критерия стабилизации деформации, особенно для водонасыщенных материалов.

Благодарности

Исследование выполнено при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации.

Литература

1. *Wang Q., Tang A. M., Cui Y.-J., Delage P., Barnichon J.-D., Ye W.-M.* The effects of technological voids on the hydro-mechanical behaviour of compacted bentonite–sand mixture // Soils and Foundations. 2013. Vol. 53. No 2. Pp. 232—245.

2. *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.

3. *Horpibulsuk S., Yangsukkaseam N., Chinkulkijniwat A., Du Y. J.* Compressibility and permeability of Bangkok clay compared with kaolinite and bentonite // Applied Clay Science. 2011. Vol. 52. Pp. 150—159.

4. *Ильина О. А., Крупская В. В., Винокуров С. Е., Калмыков С. Н.* Современное состояние в разработках и использовании глинистых материалов в качестве инженерных барьеров безопасности на объектах консервации и захоронения РАО в России // Радиоактивные отходы. 2019. №4 (9). С. 71—84. DOI: 10.25283/2587-9707-2019-4-71-84.

5. *Мартынов К. В., Захарова Е. В., Дорофеев А. Н., Зубков А. А., Прищеп А. А.* Использование глинистых материалов для создания защитных барьеров радиационно опасных объектов // Радиоактивные отходы. 2020. № 3 (12). С. 39—53. DOI: 10.25283/2587-9707-2020-3-39-53.

6. ГОСТ 12248.4-2020. Грунты. Определение характеристик деформируемости методом компрессионного сжатия. — М. : Стандартинформ, 2020. 15 с.

7. ГОСТ 25584-2016. Грунты. Методы лабораторного определения коэффициента фильтрации. — М. : Стандартинформ, 2016. 21 с.

8. *Мартынов К. В., Захарова Е. В., Дорофеев А. Н., Зубков А. А., Прищеп А. А.* Функциональные свойства глинистых материалов для защитных барьеров радиационно опасных объектов // Радиоактивные отходы. 2020. №4 (13). С. 42—57. DOI: 10.25283/2587-9707-2020-4-42-57.

9. *Мартынов К. В., Жаркова В. О., Захарова Е. В.* Определение давления набухания и капиллярного всасывания глинистых материалов для барьеров безопасности // Труды Всероссийского ежегодного семинара по экспериментальной минералогии, петрологии и геохимии / Отв. редактор О. А. Луканин. — М. : ГЕОХИ РАН, 2019. С. 387—390.

10. *Мартынов К. В., Жаркова В. О., Захарова Е. В.* Фильтрация воды через глиняные барьеры безопасности ПЗРО // Труды Всероссийского ежегодного семинара по экспериментальной минералогии, петрологии и геохимии / Отв. редактор О. А. Луканин. — М. : ГЕОХИ РАН, 2018. С. 425—428.

11. ГОСТ 5180-2015. Грунты. Методы лабораторного определения физических характеристик. — М. : Стандартинформ, 2016. 22 с.

12. *Мартынов К. В., Жаркова В. О., Захарова Е. В.* Компрессионные и фильтрационные свойства

барьерных материалов // Глины и глинистые минералы: VI Российская Школа по глинистым минералам “Argilla Studium-2019” и IV Российское Совещание по глинам и глинистым минералам ГЛИНЫ-2019. Материалы докладов. М. : ИГЕМ РАН, 2019. С. 265—268.
13. *Komine H., Ogata N.* Experimental study of swelling characteristics of sand-bentonite mixture for nuclear waste disposal // Soils and foundations. 1999. Vol. 39. No. 2. P. 83—97.
14. *Захарова Е. В., Мартынов К. В.* Требования к барьерным глинистым материалам для захоронения и консервации радиационно-опасных объектов // Глины и глинистые минералы: VI Российская Школа по глинистым минералам “Argilla Studium-2019” и IV Российское Совещание по глинам и глинистым минералам ГЛИНЫ-2019. Материалы докладов. — М. : ИГЕМ РАН, 2019. С. 257—259.
15. *Шмонов В. М., Витовтова В. М., Жариков А. В.* Флюидная проницаемость пород земной коры. — М. : Научный мир, 2002. 216 с.
16. *Кочкин Б. Т., Мальковский В. И., Юдинцев С. В.* Научные основы оценки безопасности геологической изоляции долгоживущих радиоактивных отходов (Енисейский проект). — М. : ИГЕМ РАН, 2017. 384 с.

Информация об авторах

Мартынов Константин Валентинович, кандидат геолого-минералогических наук, ведущий научный сотрудник, Институт физической химии и электрохимии им. А. Н. Фрумкина РАН (119071, Москва, Ленинский пр-т, д. 31, корп. 4), e-mail: mark0s@mail.ru.
Жаркова Виктория Олеговна, научный сотрудник, Институт физической химии и электрохимии им. А. Н. Фрумкина РАН (119071, Москва, Ленинский пр-т, д. 31, корп. 4), e-mail: v.zarkova11@gmail.com.
Захарова Елена Васильевна, кандидат химических наук, заведующая лабораторией, Институт физической химии и электрохимии им. А. Н. Фрумкина РАН (119071, Москва, Ленинский пр-т, д. 31, корп. 4), e-mail: zakharova@ipc.rssi.ru.

Библиографическое описание статьи

Мартынов К. В., Жаркова В. О., Захарова Е. В. Деформация и фильтрация в глинистых материалах для защитных барьеров радиационно опасных объектов // Радиоактивные отходы. 2021. № 4 (17). С. 78—88. DOI: 10.25283/2587-9707-2021-4-78-88.

DEFORMATION AND FILTRATION IN CLAY MATERIALS CONSTITUTING TO THE SAFETY BARRIERS OF RADIATION HAZARDOUS FACILITIES

Martynov K. V., Zharkova V. O., Zakharova E. V.

A. N. Frumkin Institute of Physical Chemistry and Electrochemistry, Russian Academy of Sciences, Moscow, Russia

Article received on October 01, 2021

The paper focuses on the compression tests implemented to study one-dimensional deformation in dry and water-saturated state and pressure filtration in samples of dispersed materials developed as a construction material for waterproof barriers. These materials are made of kaolin, polymineral and bentonite clays and their mixtures. For

the studied samples, the paper presents the plotted dependences between deformation, swelling pressure, capillary suction, permeability coefficients and the skeleton density (dry density). The study has confirmed that kaolinite containing materials tend to compaction and the montmorillonite – to swelling. The compression characteristics of a polymineral clay material and mixed materials do not always depend on the mineral composition alone. Swelling pressure manifests itself in case of bentonite and polymineral clay-based materials and is practically absent in materials made of kaolins and their mixtures with 30 wt.% bentonite. The permeability coefficients increase along with the growing ratio of kaolinite and montmorillonite contents, whereas it is the additivity that is characteristic for mixed materials.

Keywords: *radioactive waste, waterproof barrier, kaolin, bentonite, effective pressure, skeleton density, odometer, deformation, swelling pressure, capillary suction, permeability coefficient.*

Acknowledgements

The study was performed with the financial support provided by the Ministry of Science and Higher Education of the Russian Federation.

References

1. Wang Q., Tang A. M., Cui Y.-J., Delage P., Barnichon J.-D., Ye W.-M. The effects of technological voids on the hydro-mechanical behaviour of compacted bentonite–sand mixture. *Soils and Foundations*. 2013, vol. 53, no. 2, pp. 232—245.

2. 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.

3. Horpibulsuk S., Yangsukkaseam N., Chinkulkijniwat A., Du Y. J. Compressibility and permeability of Bangkok clay compared with kaolinite and bentonite. *Applied Clay Science,* 2011, vol. 52, pp. 150—159.

4. Ilina O. A., Krupskaya V. V., Vinokurov S. E., Kalmykov S. N. Sovremennoye sostoyaniye v razrabotkakh i ispol'zovanii glinistykh materialov v kachestve inzhenernykh bar'yerov bezopasnosti na ob"yektakh konservatsii i zakhoroneniya RAO v Rossii [State-of-Art in the Development and Use of Clay Materials as Engineered Safety Barriers at Radioactive Waste Conservation and Disposal Facilities in Russia]. *Radioaktivnyye otkhody — Radioactive Waste,* 2019, no. 4 (9), pp. 71—84. DOI: 10.25283/2587-9707-2019-4-71-84.

5. Martynov K. V., Zakharova E. V., Dorofeev A. N., Zubkov A. A., Prishchep A. A. Ispol'zovaniye glinistykh materialov dlya sozdaniya zashchitnykh bar'yerov radiatsionno opasnykh ob"yektov [Use of Clay Materials in the Construction of Protective Barriers at Radiation Hazardous Facilities]. *Radioaktivnyye otkhody — Radioactive Waste,* 2020, no. 3 (12), pp. 39—53. DOI: 10.25283/2587-9707-2020-3-39-53.

6. GOST 12248.4-2020. *Grunty. Opredeleniye kharakteristik deformiruyemosti metodom kompressionnogo szhatiya* [Soils. Measurements of Deformability Characteristics by Compression Method]. Moscow, Standartinform Publ., 2020. 15 p.

7. GOST 25584-2016. *Grunty. Metody laboratornogo opredeleniya koeffitsiyenta fil'tratsii* [Soils. Methods for the Laboratory Measurement of Permeability Coefficients]. Moscow, Standartinform Publ., 2016. 21 p.

8. Martynov K. V., Zakharova E. V., Dorofeev A. N., Zubkov A. A., Prishchep A. A. Funktsional'nyye svoystva glinistykh materialov dlya zashchitnykh bar'yerov radiatsionno opasnykh ob"yektov [Performance of Clay Materials Constituting to Safety Barriers in Radiation Hazardous Facilities]. *Radioaktivnyye otkhody — Radioactive Waste,* 2020, no. 4 (13), pp. 42—57. DOI: 10.25283/2587-9707-2020-4-42-57.

9. Martynov K. V., Zharkova V. O., Zakharova E. V. Opredeleniye davleniya nabukhaniya i kapillyarnogo vsasyvaniya glinistykh materialov dlya bar'yerov bezopasnosti [Clay Materials of the Safety Barriers: Swelling Pressure and Capillary Suction Measurements]. *Trudy Vserossiyskogo yezhegodnogo seminara po eksperimental'noy mineralogii, petrologii i geokhimii* [Proceedings of the All-Russian Annual Workshop on Experimental Mineralogy, Petrology and Geochemistry]. Resp. editor O. A. Lukanin. Moscow, GEOKHI RAN Publ., 2019. Pp. 387—390.

10. Martynov K. V., Zharkova V. O., Zakharova E. V. Fil'tratsiya vody cherez glinyanyye bar'yery bezopasnosti PZRO [Water Filtration Through RWDF Clay Safety Barriers]. *Trudy Vserossiyskogo yezhegodnogo seminara po eksperimental'noy mineralogii, petrologii i geokhimii* [Proceedings of the All-Russian Annual Workshop on Experimental Mineralogy, Petrology and Geochemistry]. Resp. editor O. A. Lukanin. Moscow, GEOKHI RAN Publ., 2018. Pp. 425—428.

11. GOST 5180-2015. *Grunty. Metody laboratornogo opredeleniya fizicheskikh kharakteristik* [Soils. Physical Characteristics and Laboratory-based Measurement Methods]. Moscow, Standartinform Publ., 2016. 22 p.

12. Martynov K. V., Zharkova V. O., Zakharova E. V. Kompressionnyye i fil'tratsionnyye svoystva bar'yernykh materialov [Compression and Filtration properties of Barrier Materials]. *Gliny i glinistyye mineraly: VI Rossiyskaya Shkola po glinistym mineralam "Argilla Studium-2019" i IV Rossiyskoye Soveshchaniye*

po glinam i glinistym mineralam GLINY-2019. Materialy dokladov [Clays and clay minerals: VI Russian School on Clay Minerals Argilla Studium-2019 and IV Russian Meeting on Clays and Clay Minerals CLAY-2019. Proceedings]. Moscow, IGEM RAN Publ., 2019. Pp. 265—268.
13. Komine H., Ogata N. Experimental study of swelling characteristics of sand-bentonite mixture for nuclear waste disposal. *Soils and foundations,* 1999, vol. 39, no. 2, pp. 83—97.
14. Zakharova E. V., Martynov K. V. Trebovaniya k bar'yernym glinistym materialam dlya zakhoroneniya i konservatsii radiatsionno-opasnykh ob"yektov [Requirements to the Barrier Clay Materials Intended for the Entombment and Isolation of Radiation Hazardous Facilities]. *Gliny i glinistyye mineraly: VI Rossiyskaya Shkola po glinistym mineralam "Argilla Studium-2019" i IV Rossiyskoye Soveshchaniye po glinam i glinistym mineralam GLINY-2019. Materialy dokladov* [Clays and clay minerals: VI Russian School on Clay Minerals Argilla Studium-2019 and IV Russian Meeting on Clays and Clay Minerals CLAY-2019. Proceedings]. Moscow, IGEM RAN Publ., 2019. Pp. 257—259.
15. Shmonov V. M., Vitovtova V. M., Zharikov A. V. *Flyuidnaya pronitsayemost' porod zemnoy kory* [Fluid Permeability of Crustal Rocks]. Moscow, Nauchnyy mir Publ., 2002. 216 p.
16. Kochkin B. T., Malkovsky V. I., Yudintsev S. V. *Nauchnyye osnovy otsenki bezopasnosti geologicheskoy izolyatsii dolgozhivushchikh radioaktivnykh otkhodov (Yeniseyskiy proyekt)* [Scientific Basis for the Safety Assessment of Geological Disposal Facilities for Long-lived Radioactive Waste (Yeniseiskiy Project)]. Moscow, IGEM RAN Publ., 2017. 384 p.

Information about the authors

Martynov Konstantin Valentinovich, Ph.D., leading researcher, A. N. Frumkin Institute of Physical Chemistry and Electrochemistry, Russian Academy of Sciences (31, Leninsky prosp., Moscow, 119071, Russia), e-mail: mark0s@mail.ru.

Zharkova Victoria Olegovna, researcher, A. N. Frumkin Institute of Physical Chemistry and Electrochemistry, Russian Academy of Sciences (31, Leninsky prosp., Moscow, 119071, Russia), e-mail: v.zarkova11@gmail.com.

Zakharova Elena Vasilievna, Ph.D., head of laboratory, A. N. Frumkin Institute of Physical Chemistry and Electrochemistry, Russian Academy of Sciences (31, Leninsky prosp., Moscow, 119071, Russia), e-mail: zakharova@ipc.rssi.ru.

Bibliographic description

Martynov K. V., Zharkova V. O., Zakharova E. V. Deformation and Filtration in Clay Materials Constituting to the Safety Barriers of Radiation Hazardous Facilities. *Radioactive Waste,* 2021, no. 4 (17), pp. 78—88. DOI: 10.25283/2587-9707-2021-4-78-88. (In Russian).