# **EFFETTI DELLA DOPPIA STRUTTURA SUL COMPORTAMENTO CHEMO-IDRO-MECCANICO DI ARGILLE ATTIVE COMPATTATE**

G. Della Vecchia Politecnico di Torino gabriele.dellavecchia@polito.it

> G. Musso Politecnico di Torino guido.musso@polito.it

E. Romero Universitat Politècnica de Catalunya enrique.romero-morales@upc.edu

## Sommario

In questa nota sono illustrati alcuni risultati di prove di porosimetria ad intrusione di mercurio e di microscopia elettrica a scansione, effettuate allo scopo di evidenziare l'influenza della concentrazione del soluto sulla struttura di campioni di argilla attiva compattata. Ulteriori risultati in termini di evoluzione della conducibilità idraulica in funzione della salinità del fluido interstiziale confermano l'importanza della doppia struttura sul comportamento idro-meccanico. Viene infine proposto un modello accoppiato chemo-idro-meccanico a doppia struttura, allo scopo di simulare e interpretare la risposta deformativa in condizioni transitorie.

## Introduzione

Il comportamento idro-chemo-meccanico delle argille attive compattate assume un ruolo fondamentale nell'ambito dell'ingegneria civile e ambientale, essendo ampiamente utilizzate nelle barriere impermeabilizzanti. Questo tipo di utilizzo impone la necessità di conoscere la variazione di volume e delle proprietà idrauliche in seguito a variazioni di composizione e concentrazione chimica del fluido interstiziale. I materiali attivi compattati mostrano una doppia struttura molto sviluppata, composta da pori all'interno degli aggregati (pori *intra-aggregato* o *micropori*) e pori di dimensioni maggiori tra gli aggregati (pori *inter-aggregato* o *macropori*). La risposta volumetrica di tali materiali in condizioni transitorie è significativamente influenzata dalle caratteristiche microstrutturali (es. (Musso et al., 2003)).

Molti lavori di letteratura si sono concentrati sul comportamento chemo-meccanico di argille ricostituite. Gli effetti chimici sono stati tradizionalmente interpretati con la teoria del doppio strato diffuso, ipotizzando distribuzioni di pori uniformi. Informazioni riguardanti gli effetti chimici su argille indisturbate o compattate sono tuttavia abbastanza limitate (si veda ad esempio (Di Maio and Fenelli, 1997)). La doppia struttura delle argille attive compattate è stata documentata da diversi autori (es. Musso et al. (2003) e Romero et al. (2011)). La necessità di considerare esplicitamente l'effetto della doppia struttura è stata evidenziata anche da Lloret et al. (2003).

Allo scopo di fornire una interpretazione sistematica degli effetti della concentrazione del fluido interstiziale sulla struttura dei terreni compattati, vengono proposti alcuni risultati di porosimetrie a intrusione di mercurio (MIP), microscopie elettroniche a scansione (ESEM) e dati di conduttività idraulica di una bentonite compattata, saturata con diverse soluzioni di cloruro di sodio (NaCl) e cloruro di calcio (CaCl<sub>2</sub>). Tali dati, insieme a risultati di prove edometriche presenti in letteratura (Castellanos et al. (2008)) vengono quindi utilizzati per proporre un modello concettuale per il comportamento chemo-idro-meccanico accoppiato, nel quale viene tenuta in conto esplicitamente la doppia struttura del materiale. Il modello trae spunto dai lavori

di Gens and Alonso (1992) per quanto riguarda il comportamento meccanico e di Gerke and van Genuchten (1993) per quanto riguarda il trasporto di massa.

# Variazioni microstrutturali indotte dagli effetti chimici

Nel seguito vengono presentati alcuni risultati di prove MIP ed ESEM, che, insieme alle misure di conducibilità idraulica, sono state interpretate alla luce di possibili variazioni di micro e macro porosità.

Il terreno utilizzato è la bentonite FEBEX (Almerìa, Spagna), un materiale noto in letteratura per il suo utilizzo nell'ambito delle barriere per lo stoccaggio di scorie nucleari. Il materiale ha un limite liquido  $w_L = 102\%$ , un limite plastico  $w_P = 53\%$ , una percentuale di particelle di dimensione inferiore ai 2 µm pari a 85%, un peso specifico delle particelle solide  $G_s = 2.70$  e una superficie specifica  $S_s = 725 \text{ m}^2/\text{g}$ . I provini sono stati preparati comprimendo in condizioni edometriche (compattazione statica) il materiale al contenuto in acqua igroscopico,  $w_0 = 12\%$ , ad una densità secca iniziale  $\rho_{d0} = 1.65 \text{ Mg/m}^3$ . I campioni sono stati successivamente caricati in edometro a contenuto in acqua costante fino ad uno sforzo verticale di 200 kPa e successivamente saturati a sforzo verticale costante.

# Risultati di prove ESEM e MIP

In figura 1 sono presentate alcune immagini ESEM di campioni di bentonite FEBEX in differenti condizioni chemo-idrauliche. Nella figura 1a è rappresentato il materiale nel suo stato iniziale dopo la compattazione: gli aggregati sono ben distinguibili. Durante la fase di saturazione gli aggregati rigonfiano invadendo i macropori. L'entità del rigonfiamento dipende dalla salinità della soluzione: in figura 1b (soluzione salina 0.5 M di NaCl) gli aggregati sono più chiaramente visibili che in figura 1c (acqua distillata).



Figura 1. Immagini ESEM di campioni di bentonite FEBEX compattata staticamente: a) condizione iniziale; b) dopo saturazione con soluzione 0.5 M di NaCl; c) dopo saturazione con acqua distillata

In figura 2 è rappresentata la distribuzione della dimensione dei pori (PSD) ottenuta con le prove porosimetrie MIP su provini saturati con soluzioni saline a diverse concentrazioni. Il provino compattato, nella condizione iniziale, mostra una chiara distribuzione bimodale delle dimensioni dei pori. La distribuzione dei pori è quasi identica nel caso di provino saturato con la soluzione 5.5 M, eccetto per un piccolo aumento della frequenza di pori con diametro maggiore di  $50\mu$ m. Al diminuire della salinità della soluzione aumentano le differenze in termini di distribuzione dei pori, con un picco dominante che emerge in corrispondenza di 800 - 1000nm. Incontro Annuale dei Ricercatori di Geotecnica 2011 - IARG 2011 Torino, 4-6 Luglio 2011



Figura 2. Distribuzione dei pori di provini compattati di bentonite FEBEX saturati con differenti soluzioni saline.

L'indice dei vuoti e viene suddiviso in due componenti: l'indice dei vuoti intra-aggregato  $e_m$  e l'indice dei vuoti inter-aggregato  $e_M$ :

$$e = e_m + e_M = \frac{V_{vm}}{V_s} + \frac{V_{vM}}{V_s},\tag{1}$$

dove  $V_{vm}$  è il volume dei vuoti intra-aggregato,  $V_{vM}$  è il volume dei vuoti inter-aggregato e  $V_s$  è il volume delle particelle solide. Utilizzando il criterio proposto da Della Vecchia (2009) e da Romero et al. (2011), la separazione tra  $e_M$  ed  $e_m$  è stata identificata in corrispondenza di un diametro dei pori discriminante di 900  $\mu$ m. L'evoluzione di  $e_m$  ricavata dalle prove di porosimetria è presentata in figura 3 in funzione della salinità del fluido interstiziale. La variabile tensionale utilizzata per descrivere la risposta chemo-meccanica è la suzione osmotica  $\pi$ , espressa attraverso l'equazione di van't Hoff:

$$\pi = icRT,\tag{2}$$

dove *i* è il numero di atomi nella quale la molecola si dissocia quando si dissolve, *c* è la concentrazione molare, *R* è la costante universale dei gas e *T* è la temperatura assoluta. L'evoluzione di  $e_m$  con  $\pi$  è comparabile utilizzando sia NaCl che CaCl<sub>2</sub>, a conferma dell'efficacia dell'uso della suzione osmotica come variabile tensionale, suggerendo che nelle condizioni analizzate l'effetto di fenomeni di scambio cationico sul comportamento meccanico è di second'ordine. La deformazione microstrutturale  $\epsilon_{vol}^m$ , univocamente legata all'indice dei vuoti microstrutturale dalla relazione  $\epsilon_{vol}^m = de_m/(1 + e)$ , è stata modellata sulla base dell'equazione proposta da Alonso et al. (1994), espressa in funzione della suzione osmotica:

$$d\epsilon_{vol}^m = \alpha \exp\left(-\beta\pi\right) d\pi,\tag{3}$$

dove con  $\alpha$  e  $\beta$  si indicano due parametri del materiale.

### Effetti della concentrazione salina sulla conducibilità idraulica

La condicibilità idraulica di provini di bentonite è notevolmente influenzata dalla concentrazione salina, come dimostrano i dati di letteratura (es. Mesri and Olson (1971) e Calvello et al. (2005)). In figura 4 sono presentati dati di conducibilità idraulica per campioni compattati e ricostituiti di bentonite FEBEX saturati con fluidi a diverse concentrazioni saline, determinati dall'analisi di prove edometriche. Si può osservare come la conducibilità idraulica K vari con l'indice dei vuoti e come, a parità di indice dei vuoti, K aumenti al crescere della concentrazione salina.

Incontro Annuale dei Ricercatori di Geotecnica 2011 - IARG 2011 Torino, 4-6 Luglio 2011



Figura 3. Evolutione dell'indice dei vuoti microscrutturale in funzione della suzione osmotica: dati sperimentali e modello

Ciò appare in accordo con i risultati delle porosimetrie: un incremento di conducibilità idraulica è legato alla diminuzione della dimensione degli aggregati ed a un conseguente aumento della dimensione dei pori inter-aggregato. Questa peculiarità si nota anche nel caso di provini ricostituiti.



Figura 4. Evoluzione della conducibilità idraulica con l'indice dei vuoti e la concentrazione chimica del fluido interstiziale.

#### Effetti della doppia struttura sulla risposta deformativa

Sfruttando il lavoro di Gens and Alonso (1992), la deformazione totale  $\epsilon_{vol}$  del materiale è definita come una combinazione della deformazione della macro-struttura  $\epsilon_{vol}^M$  e della deformazione degli aggregati  $\epsilon_{vol}^m$ :

$$\epsilon_{vol} = \epsilon_{vol}^M + \alpha^* \epsilon_{vol}^m,\tag{4}$$

dove  $\alpha^*$  è la frazione di deformazione degli aggregati che, non invadendo la macro-porosità, contribuisce alla deformazione totale. Trascurando l'irreversibiltà della risposta meccanica, si assume

$$\mathrm{d}\epsilon_{vol}^{M} = k \frac{\mathrm{d}p'}{p'} + k_{\pi} \frac{\mathrm{d}\pi}{\pi},\tag{5}$$

dove  $k \in k_{\pi}$  sono due costanti del materiale. La calibrazione dei parametri  $\alpha^*$ ,  $k \in k_{\pi}$  è stata effettuata sulla base di prove edometriche presentate in Castellanos et al. (2008), che per brevità non vengono riportate in questo lavoro.

G. Della Vecchia et al.

### Effetti della doppia struttura su processi di trasporto chemo-idraulici

Nell'analisi di problemi di interesse ingegneristico, le condizioni di stazionarietà per i fenomeni chimico-idraulici spesso non vengono raggiunte, a causa della bassa permeabilità dei mezzi coinvolti e dei bassi valori assunti dai coefficienti di diffusione in gioco. L'effetto della doppia struttura sul comportamento meccanico in condizioni transitorie è stato valutato simulando una prova di diffusione condotta in edometro, nella quale oltre a monitorare lo spostamento si è registrata la concentrazione di una soluzione salina di NaCl ai due capi del campione. Il mezzo poroso a doppia struttura viene considerato come una sovrapposizione di due continui omogenei, con differenti carattistiche idrauliche e di trasporto chimico, che occupano lo stesso volume (Gerke and van Genuchten (1993)). Nel seguito si userà il pedice m per la microstruttura e M per la macro-struttura. In ogni punto i potenziali idraulici e osmotici dei due domini sono in generale diversi, creando la possibilità di avere scambio di acqua o di sale tra i pori intra- ed inter-aggregato. I termini di scambio di sale e acqua verranno indicati nel seguito come  $q_s^{ex}$  e  $q_w^{ex}$ , rispettivamente.

#### Equazioni di bilancio della massa di sale

Assumendo che la densità dell'acqua  $\rho_w$  sia costante e che non sia possibile trasporto solo attraverso gli aggregati, le equazioni di bilancio della massa salina nei due domini si possono scrivere come

$$\frac{(\partial c_m \phi_m)}{\partial t} - q_s^{ex} = 0$$

$$\frac{(\partial c_M \phi_M)}{\partial t} + \nabla \cdot (c_m \boldsymbol{q}_M (1 - \omega) - \phi_M (1 - \omega) D_{M0} \nabla c_m) + q_s^{ex} = 0,$$
(6)

avendo indicato con  $c_m$  e  $c_M$  la concentrazione di sale nella micro- e nella macro-struttura e con  $\phi_m$  e  $\phi_M$  le rispettive porosità.  $\omega$  è l'efficienza osmotica e  $D_{M0}$  il coefficiente di diffusione della macro-struttura, definito in modo da tenere in conto la tortuosità e il fattore di ritardo.  $q_M$  rappresenta il flusso advettivo d'acqua nella macrostruttura (relativo allo scheletro solido), legato al gradiente dei potenziali idraulico e chimico:

$$\boldsymbol{q}_{M} = -\frac{K_{M}}{\rho_{w}g}\nabla\left(p_{M}\right) + \frac{\omega K_{M}}{\rho_{w}g}\nabla\left(\pi_{M}\right),\tag{7}$$

dove  $p_M$ ,  $\pi_M$  e  $K_M$  sono la pressione, la suzione osmotica e la conducibilità idraulica della macro-struttura. Nell'equazione (7) non è stato considerato il contributo della componente geodetica, trascurabile rispetto a quello della pressione idraulica.

Il termine di scambio viene assunto proporzionale alla differenza di concentrazione tra i due domini ed espresso secondo la legge

$$q_s^{ex} = \hat{\alpha} \exp\left(-\hat{\gamma}c_M\right) \left(c_M - c_m\right),\tag{8}$$

dove  $\hat{\alpha} e \hat{\gamma}$  sono due coefficienti fenomenologici che regolano lo scambio di sale.

### Equazioni di bilancio della massa d'acqua

Le equazioni di continuità della massa d'acqua vengono espresse come

$$\frac{(\partial \phi_m)}{\partial t} - q_w^{ex} = 0$$

$$\frac{(\partial \phi_M)}{\partial t} + \nabla \cdot \left( -\frac{K_M}{\rho_w g} \nabla (p_M) + \frac{K_\pi}{\rho_w g} \nabla (\pi_M) \right) + q_w^{ex} = 0.$$
(9)

Incontro Annuale dei Ricercatori di Geotecnica 2011 - IARG 2011 Torino, 4-6 Luglio 2011

Dalle ipotesi effettuate, la consistenza tra il bilancio di massa del sale e dell'acqua nella microporosità impone che

$$q_w^{ex} = \frac{q_s^{ex}}{c_m} - \frac{\phi_m}{c_m} \frac{\partial c_m}{\partial t}.$$
(10)

## Simulazione di una prova di diffusione a deformazione verticale libera

Il modello è stato utilizzato per simulare una prova di diffusione in edometro a deformazione verticale libera. La prova è stata condotta in una apparecchiatura edometrica modificata inserendo due serbatoi di volume noto sia alla base che alla testa del provino, in modo tale da consentire il controllo delle condizioni al contorno di tipo chimico. Il materiale è stato preparato come descritto nella sezione 2, quindi saturato sotto un carico verticale di 200 kPa con una soluzione 5.5 M di NaCl. Successivamente il serbatoio alla base del provino è stato riempito di acqua distillata: tale condizione è stata mantenuta nel tempo sostituendo frequentemente l'acqua del serbatoio. Contemporaneamente sono state misurate la concentrazione nel serbatoio superiore, libera di evolvere a seguito di diffusione, e lo spostamento verticale del campione. I risultati della prova sperimentale sono stati simulati attraverso il metodo degli elementi finiti utilizzando i parametri di tabella 1, mentre l'efficienza osmotica è stata fatta dipendere localmente dalla concentrazione salina (si veda Bresler (1973)). In figura 5 viene presentato il confronto tra dati sperimentali e simulazione, sia in termini di spostamento verticale che in termini di concentrazione nel serbatoio superiore.



Figura 5. Prova di diffusione in edometro: risultati sperimentali e simulazione numerica.

Tabella 1. Parametri del modello

$D_M (\mathrm{m}^2/\mathrm{s})$	$\beta$ (kPa <sup>-1</sup> )	$\alpha$ (kPa <sup>-1</sup> )	$\alpha^*$	$k_{\pi}$	$\hat{\alpha}$ (1/s)	$\hat{\alpha}$	$K_M$ (m/s)
$9 \cdot 10^{-11}$	$2 \cdot 10^{-4}$	$3.2 \cdot 10^{-5}$	0.49	0.003	2	8	$5 \cdot 10^{-12}$

### Conclusioni

La doppia struttura esistente in campioni compattati di bentonite FEBEX è stata individuata in modo diretto mediante prove ESEM e MIP e in modo indiretto attraverso l'interpretazione di dati di permeabilità. La relazione tra micro-porosità e concentrazione salina (suzione osmotica) è stata determinata analizzando risultati di prove MIP eseguite su campioni saturati con diverse concentrazioni, mentre la relazione tra macro-porosità e suzione osmotica è stata determinata mediante l'analisi di prove edometriche riportate in letteratura. Ciò ha consentito la calibrazione

di un modello chemo-meccanico a doppia struttura, successivamente associato a un modello di trasporto chemo-idraulico anch'esso a doppia struttura per la simulazione di prove in condizioni monodimensionali. I risultati delle simulazioni mostrano che la formulazione proposta consente di riprodurre aspetti quali la discontinuità temporale del fenomeno deformativo durante la fase di desalinizzazione e le differenti scale temporali associate alle deformazioni indotte da salinizzazione e desalinizzazione.

## Bibliografia

- Alonso, E., Gens, A., and Gehling, W. (1994). Elastoplastic model for unsaturated expansive soil. In *3rd Conf. Num. Meth. Geotech. Eng*, pages 11–18.
- Bresler, E. (1973). Anion exclusion and coupling effects in nonsteady transport through unsaturated soils: I. theory. *Soil Science Society of America Proceedings*, 37:663–669.
- Calvello, M., Lasco, M., Vassallo, R., and Di Maio, C. (2005). Compressibility and residual shear strenght of smectitic clays: influence of pore aqueous solutions and organic solvent. *Rivista Italiana di Geotecnica*, 1:34–46.
- Castellanos, E., Villar, M., Romero, E., Lloret, A., and Gens, A. (2008). Chemical impact on the hydro-mechanical behaviour of high-denisity febex bentonite. *Physics and Chemistry of the Earth*, 33:515–526.
- Della Vecchia, G. (2009). *Coupled hydro-mechanical behaviour of compacted clayey soils*. PhD thesis, Politecnico di Milano.
- Di Maio, C. and Fenelli, G. (1997). Influenza delle interazioni chimico-fisiche sulla deformabilità di alcuni terreni argillosi. *Rivista Italiana di Geotecnica*, 1:43–59.
- Gens, A. and Alonso, E. (1992). A framework for the behaviour of unsaturated expansive clays. *Canadian Geotechnical Journal*, 29:1013–1032.
- Gerke, H. and van Genuchten, M. (1993). A dual-porosity model for simulating the preferential movement of water and solutes in structured porous media. *Water Resources Research*, 29(2):305–319.
- Lloret, A., Villar, M., Sànchez, M., Gens, A., Pintado, X., and Alonso, E. (2003). Mechanical behaviour of heavily compacted bentonite under high suction changes. *Géotechnique*, 53(1):27–40.
- Mesri, G. and Olson, R. (1971). Mechanisms controlling the permeability of clays. *Clays and Clay Minerals*, 19:151–158.
- Musso, G., Romero, E., Gens, A., and Castellanos, E. (2003). The role of structure in the chemically induced deformations of febex bentonite. *Applied Clay Sciences*, 23:229–237.
- Romero, E., Della Vecchia, G., and Jommi, C. (2011). An insight into the water retention properties of compacted clayey soils. *Géotechnique*, 61(4):313–328.