

تأثیر تغییرات pH اولیه کائولینیت بر برخی خصوصیات ژئوتکنیکی و ژئوتکنیک زیست‌محیطی آن

وحیدرضا اوحدی^{۱*}، زهرا قره‌لو^۲، فواد نادری^۲

^۱ استاد دانشکده مهندسی، دانشگاه بوعلی سینا و عضو هیئت علمی وابسته دانشکده عمران، دانشکده فنی، دانشگاه تهران
^۲ دانشجوی کارشناسی ارشد راه- ترابری، مؤسسه آموزش عالی عمران و توسعه، همدان

(دریافت: ۹۷/۶/۲۰، پذیرش: ۹۸/۴/۲۳، نشر آنلاین: ۹۸/۴/۲۳)

چکیده

تغییر خصوصیات ژئوتکنیکی و ریزساختاری خاک رسی در شرایط اسیدی و قلیائی، موضوع کاربرد خاک‌های رسی در پروژه‌های ژئوتکنیکی و ژئوتکنیک زیست‌محیطی را با چالش روبرو کرده است. در سال‌های اخیر برای استفاده در مراکز دفن زباله، استفاده از لایه‌های رسی با دامنه خمیری کم در زیر لایه رسی با دامنه خمیری زیاد، توصیه شده است. کم‌تر بودن تغییرات خصوصیات مهندسی خاک‌های با دامنه خمیری کم یکی از علت‌های اصلی استفاده از آن‌ها در مراکز دفن زباله است. هدف این پژوهش، تعیین تأثیر pH اولیه کائولینیت (Kaolinite) بر برخی خصوصیات ژئوتکنیکی و ژئوتکنیک زیست‌محیطی آن است. برای دستیابی به هدف فوق، در این تحقیق با اضافه نمودن اسید و یا قلیا به کائولینیت، نمونه‌های کائولینیت دارای pH متفاوت تهیه شد. سپس با انجام یک‌سری از آزمایش‌های ریزساختاری و درشت‌ساختاری بر روی نمونه‌های کائولینیت دارای pH های متفاوت (۳، ۵، ۹ و ۱۲)، تغییرات برخی خصوصیات آن مورد مطالعه قرار گرفته است. نتایج نشان می‌دهد اگرچه تغییر pH اولیه نمونه رسی کائولینیت، در منحنی دانه‌بندی، منجر به تغییرات بیش از ۵۲٪ در ابعاد دانه‌های هم‌اندازه رس شده است، لیکن با تغییر pH اولیه نمونه رسی کائولینیت، نتایج آزمایش‌های حداکثر وزن مخصوص خشک، حد روانی، دامنه خمیری، تک‌محوری و اشعه ایکس در pH های ۳، ۵ و ۱۲ نسبت به نمونه کائولینیت طبیعی (pH=8-9)، حداکثر تا ۷٪ تغییر کرده است. بر اساس نتایج تحقیق حاضر به علت ثبات نسبی خصوصیات کائولینیت در شرایط اسیدی و قلیائی، استفاده از آن به‌عنوان لایه تحتانی در بستر مرکز دفن زباله‌های شهری و صنعتی دارای توجیه مناسبی است.

کلیدواژه‌ها: کائولینیت، pH اولیه، خصوصیات ژئوتکنیکی، خصوصیات ژئوتکنیک زیست‌محیطی.

۱- مقدمه

یون‌های H^+ و OH^- ، بار لبه پولک‌های رسی متغیر بوده و مثبت و منفی می‌شود (Gratchev و Sassa، ۲۰۰۹).
تأثیر تغییر pH بر انحلال کائولینیت متفاوت است. در شرایط اسیدی عمدتاً بنیان آلومینیوم حل می‌شود (Stumm، ۱۹۹۲).
درحالی‌که در شرایط قلیایی، بنیان سیلیس کانی‌های رسی حل خواهد شد (Brady و Walther، ۱۹۸۹). بنابراین به‌طور کلی دو مکانیسم بر رفتار کانی‌های رسی در شرایط تغییر pH قابل مشاهده است؛ مکانیسم اول، غلبه نیروهای جاذبه بر دافعه بین پولک‌های رسی و در نتیجه پیشروی ساختار از حالت پراکنده به درهم با کاهش pH اولیه خاک و مکانیسم دوم، تخریب و حل شدن بخشی از کانی رسی در pH های اسیدی و بازی است (اوحدی و گودرزی، ۱۳۹۳).

خاک‌های حاوی کانی‌های رسی دارای pH های متفاوتی هستند (Cherian و همکاران، ۲۰۱۸). شکل (۱) توزیع خاک با pH های مختلف (اسیدی، قلیایی و خنثی) را در کشورهای جهان نشان می‌دهد. محققین مختلف بر تأثیر تغییر pH سیال حفره‌ای بر رفتار خاک‌های رسی تأکید کرده‌اند (Santamarina و همکاران، ۲۰۰۲). اکثر تحقیقات انجام‌شده توسط محققین به بررسی اثر تغییرات زیاد pH بر رفتار ژئوتکنیکی رس‌ها معطوف شده است (Gajo، ۲۰۰۷). بار سطح لبه پولک رسی کائولینیت^۱ که وابسته به pH است، رفتار خاک کائولینیتی را مشخص می‌کند (Siu و Wang، ۲۰۰۶). در کانی کائولینیت در مقادیر pH کم (اسیدی) و مقادیر pH زیاد (قلیایی)، به‌ترتیب به دلیل جذب

1. Kaolinite

* نویسنده مسئول؛ شماره تماس: ۰۹۱۲۱۰۷۲۰۴۲

همکاران، ۱۳۹۴). بزرگ بودن عدد pH کائولینیت به علت حضور کربنات کلسیم و شرایط قلیایی محیط شکل گیری آن است. در این راستا نمونه کائولینیت جرجیای آمریکا به علت فقدان کربنات و نیز شرایط اسیدی محیط دارای pH حدود ۵ است (Yong و همکاران، ۱۹۹۲).

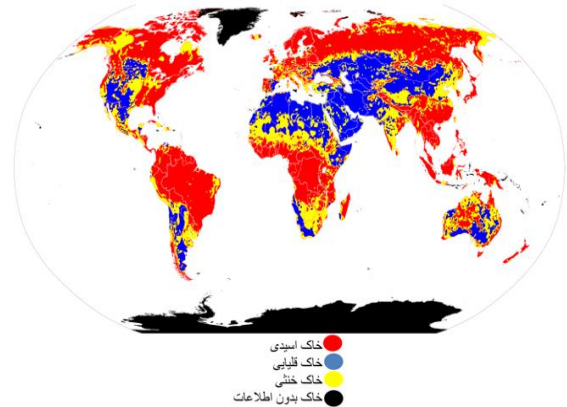
نمونه کائولینیت استفاده شده در این پژوهش دارای pH اولیه ۹ بوده که در این مقاله به عنوان pH اولیه طبیعی نامیده شده است. در تحقیق حاضر برای ایجاد شرایط اسیدی و بازی به ترتیب از محلول هیدروکلریک اسید (HCl) و محلول سدیم هیدروکسید (NaOH) که از شرکت تجاری مرک^۳ تهیه شدند، استفاده شده است. مقدار pH نهایی تغییر یافته نمونه به عنوان pH تثبیت شده نامیده شده است. به منظور ممانعت از شوک ناشی از تغییر pH و اثر آن بر ساختار خاک، برای تغییر pH از غلظت کم (۱ مولار) محلول های (HCl) و (NaOH) استفاده شد. در این پژوهش به منظور تثبیت pH اولیه کائولینیت، ابتدا محلول آب و خاک به نسبت ۱:۱۰ (۱۰ آب: ۱ خاک) ساخته شد. برای یکنواختی بیشتر محلول و به منظور به تعادل رسیدن، پس از همگن سازی توسط همزن، محلول به مدت ۲۴ ساعت نگهداری شد. سپس برای تثبیت pH نمونه های کائولینیت در pH های اولیه ۳ و ۵، افزودن هیدروکلریک اسید ۱ مولار به محلول تا زمانی ادامه یافت که نمونه به مقدار pH مورد نظر برسد (ASTM D 4972).

جدول ۱- برخی از خصوصیات ژئوتکنیکی کائولینیت سوپر زنون

مقدار	خصوصیات فیزیکی کائولینیت
۴۴	حد روانی
۲۹	حد خمیری
۱۵	دامنه خمیری
۲/۶۳	چگالی دانه های جامد
CL	طبقه بندی خاک
۲۷	درصد رطوبت بهینه
۱/۴۸	وزن مخصوص خشک حداکثر (گرم بر سانتی متر مکعب)

جدول ۲- برخی از خصوصیات ژئوتکنیک زیست محیطی کائولینیت سوپر زنون

مقدار	خصوصیات ژئوتکنیک زیست محیطی
۸/۹	pH
۷/۱۲	فاصله پایه کانی در آزمایش اشعه ایکس (انگستروم)
۲/۵	درصد کربنات
۹	ظرفیت تبادل کاتیونی (cmol/kg-soil)
۱۸	سطح مخصوص خاک (متر مربع بر گرم)



شکل ۱- توزیع خاک با pH های مختلف (Perry, ۲۰۱۲)

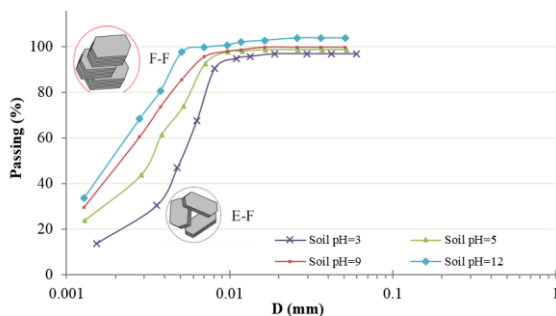
از منظر تأثیر تغییر pH بر خصوصیات مکانیکی خاک های رسی، تحقیقات گذشته نشان می دهد که در خاک های رسی با دامنه خمیری زیاد، کاهش pH سبب تغییر ساختار خاک به ساختار درهم و در نتیجه کاهش دامنه خمیری می شود (اوحدی و همکاران، ۱۳۹۵). ضمن آن که با ایجاد شرایط اسیدی در خاک رسی، ضریب نفوذ پذیری آن به میزان قابل توجهی افزایش می یابد (Essington, ۲۰۰۵). از یک سو با وجود تحقیقات وسیعی که در زمینه تأثیر تغییر pH بر خصوصیات مهندسی خاک ها صورت گرفته، به مطالعه رفتار ریزساختار و درشت ساختار خاک های رسی خصوصاً کائولینیت در شرایط اسیدی و قلیایی توجه کمتری شده است. از سوی دیگر، در دهه اخیر استفاده در مراکز دفن مهندسی زباله، استفاده از لایه های رسی با دامنه خمیری کم در زیر لایه رسی با دامنه خمیری زیاد توصیه شده است. کم تر بودن تغییرات خصوصیات ژئوتکنیک زیست محیطی مهندسی خاک های با دامنه خمیری کم یکی از علت های اصلی استفاده از آن ها در مراکز دفن مهندسی زباله است. بر این اساس، هدف این پژوهش تعیین دامنه تأثیر تغییرات pH نمونه رسی کائولینیت بر برخی پارامترهای ژئوتکنیکی و ژئوتکنیک زیست محیطی آن است.

۲- مواد و روش ها

کانی کائولینیت دارای بار وابسته به pH می باشد، در این پژوهش از نمونه خاک کائولینیت با نام تجاری کائولینیت سوپر زنون^۲ (کائولینیت - Z) و اخذ شده از منطقه شمال غربی ایران، استفاده شده است. جداول (۱) و (۲) به ترتیب برخی مشخصات ژئوتکنیکی و ژئوتکنیک زیست محیطی کائولینیت مورد استفاده، که بر اساس روش استاندارد ASTM در این تحقیق تعیین شده است را نشان می دهد. محققین دیگر شاخص خمیری نمونه کائولینیت سوپر زنون را ۲۹ و کانی های موجود در آن را به ترتیب کائولینیت، کوآرتز و کلسیت گزارش کرده اند (تابع بردار و

۳- بحث و بررسی

با کاهش pH محیط پولک‌های کائولینیت، تعدادی از گوشه‌های سطوح رسی به دلیل حرکت یون هیدروژن به سمت آن‌ها بار مثبت پیدا کرده و سبب چسبیدن گوشه‌های پولک رسی (حاوی بار مثبت شده) به سطح حاوی بار منفی پولک‌های دیگر می‌شود. در این حالت سطوح رسی به یکدیگر نزدیک شده، سرعت ته‌نشینی افزایش یافته و با فشرده شدن ذرات به یکدیگر ساختار خاک حالت مجتمع می‌یابد. بر همین اساس، افزایش مقدار pH (حالت بازی) برعکس کاهش pH، باعث منفی شدن بار گوشه‌های پولک‌های رسی کائولینیت شده و در نتیجه سبب پراکندگی ذرات رسی کائولینیت و ایجاد ساختار پراکنده می‌شود (Reeves و همکاران، ۲۰۰۶). از آنجاکه تغییر pH موجب تغییر در ساختار خاک کائولینیت می‌شود، در شکل (۲) نتایج آزمایش دانه‌بندی برای نمونه رسی کائولینیت طبیعی (pH=9) و نمونه‌های رسی کائولینیت در pH های ۳، ۵، و ۱۲ اندازه‌گیری و ارائه شده است. با توجه به سیستم طبقه‌بندی متحد (Unified)، ذرات کوچک‌تر از ۵ میکرون رس بوده و ذرات ۵-۷۵ میکرون لای در نظر گرفته می‌شوند. بنابراین براساس این سیستم، با توجه به شکل (۲) درصد هم‌اندازه رس در نمونه کائولینیت دارای pH=3 برابر با ۵۳٪ بوده، در نمونه دارای pH=5 برابر با ۷۵٪، در نمونه دارای pH=9 برابر با ۸۸٪، و در نمونه دارای pH=12 برابر با ۹۷٪ بوده است. تفاوت ۵۲٪ در درصد هم‌اندازه رس برای نمونه‌های رسی در pH های مختلف، تغییر در اندازه پولک‌های رسی را تأیید می‌کند.



شکل ۲- تغییرات در منحنی دانه‌بندی نمونه‌های رسی کائولینیت در pH های ۳، ۵، ۹ و ۱۲

در محیط‌های اسیدی، ساختار خاک رس گوشه به صفحه (E-F) و در محیط‌های قلیایی صفحه به صفحه (E-F) می‌شود (Chemeda و همکاران، ۲۰۱۵). با مشاهده شکل (۲) می‌توان دریافت که محدوده رس (هم‌اندازه رس) نسبت به تغییرات pH تغییرات مشخصی نشان داده است به طوری که در برخی از

این مراحل به صورت روزانه تکرار شد تا این که بعد از ۲ تا ۳ هفته، pH نمونه‌ها به مدت ۷۲ ساعت در pH مورد نظر ثابت ماند. سپس نمونه‌ها با pH تثبیت شده برای خشک شدن در داخل گرمخانه با دمای ۶۰ درجه سلسیوس قرار داده شدند. همچنین به منظور تثبیت pH نمونه کائولینیت در مقدار ۱۲، با افزودن محلول سدیم هیدروکسید (NaOH) ۱ مولار به نمونه خاک به روش نمونه‌سازی ذکر شده قبلی، فرآیند ذکر شده فوق انجام شد. پس از خشک شدن نمونه‌ها به منظور حصول اطمینان از مقدار pH هدف، مجدداً pH نمونه‌ها اندازه‌گیری شد. از تغییرات حدود ۰/۱ مقادیر pH که در اندازه‌گیری مجدد مشاهده شد صرف نظر شده و مقادیر pH فوق به عنوان pH تثبیت شده هدف مورد اشاره قرار گرفته است.

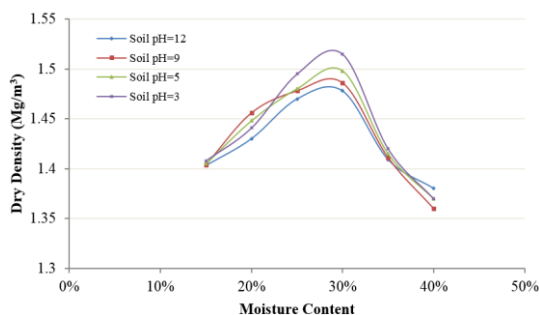
به منظور مطالعه تأثیر تغییرات pH بر اندازه ذرات رسی و منحنی دانه‌بندی، یکسری آزمایش‌های هیدرومتری بر نمونه‌های دارای pH های ۳، ۵، ۹ و ۱۲ مطابق استاندارد (ASTM D 422) انجام شد.

برای بررسی رفتار ژئوتکنیکی و درشت‌ساختاری نمونه‌ها، آزمایش حدود اتربرگ براساس استاندارد (ASTM, D 4318-87) انجام شد. برای به دست آوردن مقدار بیشینه وزن مخصوص خشک خاک رسی در pH های مختلف، آزمایش تراکم پراکتور^۴ استاندارد براساس استاندارد (ASTM D 698-78, Procedure A) انجام گرفت. همچنین در این پژوهش آزمایش تک‌محوری نیز طبق استاندارد (ASTM D 2166-87) و به منظور تعیین مقاومت برشی نمونه‌های کائولینیت دارای pH مختلف انجام شد.

همچنین برای مطالعه تأثیر تغییر pH بر خصوصیات ریزساختاری کائولینیت، تعدادی آزمایش پراش پرتو ایکس XRD^۵ با استفاده از دستگاه پراش پرتو ایکس دانشگاه بوعلی سینا (مدل D8 Advance-Bruke) بر نمونه‌های کائولینیت دارای pH های مختلف انجام شد. نحوه آماده‌سازی نمونه‌های پراش پرتو ایکس به این صورت بوده است که مقدار ۰/۱ گرم از نمونه خاک با pH اولیه تثبیت شده، با دقت ۰/۰۰۰۱ گرم وزن شده و بر روی لام شیشه‌ای تمیز ریخته شد. سپس با استفاده از قطره‌چکان، ۱۵ قطره آب بر سطح لام شیشه‌ای اضافه شد و با استفاده از کاردک بسیار نازک، آب و خاک واقع بر لام شیشه‌ای به خوبی مخلوط شدند. لام‌های شیشه‌ای حاوی نمونه‌های مذکور به مدت یک روز برای به تعادل رسیدن مخلوط آب و خاک، در داخل محفظه اشباع شده از رطوبت (دارای دمای ۲۰ درجه سلسیوس) قرار گرفتند. سپس لام‌های شیشه‌ای حاوی نمونه، خشک شده و بر آن‌ها آزمایش XRD انجام شد.

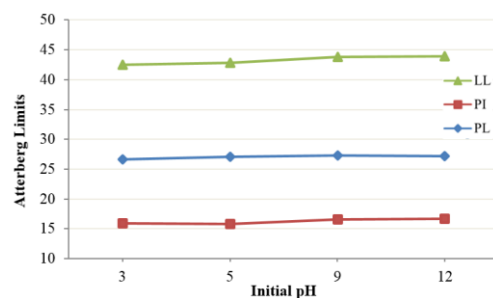
فرایند در کاتولینیت سبب می‌شود که تغییرات در حد روانی آن در مقادیر pH مختلف محسوس نباشد. به طوری که حداکثر حد روانی مربوط به pH=12 و حداقل آن در pH=3 بوده که شامل ۳٪ تغییر است. همچنین حداکثر دامنه خمیری، مربوط به نمونه دارای pH=12 و حداقل آن مربوط به نمونه دارای pH=5 بوده که به طور کلی شامل ۴٪ افزایش است. محققین دیگر نیز نشان داده‌اند که مجاورت اسید استیک و هیدروکسید سدیم با خاک رس کاتولینیت تغییر چندانی در حدود اتربرگ آن به وجود نمی‌آورد در حالی که این مواد شیمیایی باعث تغییرات قابل توجهی در حد روانی و دامنه خمیری ترکیب کاتولینیت با بنتونیت^۶ می‌شوند، لذا حساسیت بنتونیت نسبت به کاتولینیت در شرایط اسیدی و یا بازی بیشتر است (احمدی و همکاران، ۱۳۹۴). بنابراین با وجود تغییر در دانه‌بندی در اثر تغییرات pH، این تغییرات بر حدود اتربرگ کاتولینیت تأثیر چندانی نداشته و قابل صرف نظر کردن است.

تغییر در اندازه ابعاد دانه‌های خاک رسی بر پارامتر حداکثر وزن مخصوص خشک تأثیرگذار است (Yong و همکاران، ۱۹۹۲). به منظور مطالعه تأثیر تغییر pH و تغییرات ۵۲٪ اندازه ابعاد دانه‌های رسی در نمودار دانه‌بندی بر نتایج قابلیت تراکم کاتولینیت، نتایج تراکم پراکتور استاندارد برای نمونه‌های با pH ۳، ۵، ۹ و ۱۲ تعیین و در شکل (۴) ارائه شده است. با مشاهده شکل (۴) می‌توان دریافت که حداکثر تغییرات در محدوده رطوبت بهینه صورت گرفته است زیرا در محدوده رطوبت بهینه بهترین تراکم حاصل می‌شود. بر اساس نتایج ارائه شده در شکل (۴) در رطوبت بهینه (۲۷٪)، نمونه کاتولینیت دارای pH=3 دارای حداکثر و نمونه کاتولینیت دارای pH=12 دارای حداقل مقدار تراکم بوده است. تحقیقات گذشته نشان می‌دهد که در نمونه‌های بنتونیت نیز الگوی تغییرات ارائه شده در شکل (۴) با دامنه تغییرات بزرگ‌تری در مقادیر حداکثر وزن مخصوص خاک مشاهده شده است (Yong و همکاران، ۱۹۹۲).



شکل ۴- منحنی آزمایش تراکم پراکتور استاندارد برای نمونه‌های با pH ۳، ۵، ۹ و ۱۲

اندازه‌ها با تغییر pH، مقدار تغییر در اندازه درصد رس حدود ۱۰۰ درصد بوده است. در نمونه رسی pH=12 به دلیل حضور OH⁻ در خاک رسی، ساختار خاک پراکنده شده و در منحنی (شکل ۲) درصد عبوری بزرگ‌تر از ۱۰۰٪ بیانگر تمایل به واگرایی پولک‌های رسی پس از شروع آزمایش هیدرومتری است. همان‌گونه که اشاره شد تغییرات بیش از ۵۲٪ در درصد هم-اندازه رس، بیانگر تغییر در ابعاد دانه‌های رسی است. با توجه به تغییرات ایجاد شده در ابعاد دانه‌های رسی، این سؤال قابل طرح است که آیا حدود اتربرگ نمونه‌های رسی در pH های مختلف نیز در اثر تغییر اندازه ابعاد دانه‌های رسی اثرپذیر بوده و تغییر می‌کند؟ شکل (۳) تغییرات حدود اتربرگ در اثر تغییرات pH نمونه رسی کاتولینیت را نشان می‌دهد. با توجه به شکل (۲) درصد ذرات هم-اندازه لای در نمونه رسی دارای pH=3 برابر ۴۷٪، در نمونه دارای pH=5 برابر ۲۵٪، در نمونه دارای pH=9 برابر ۱۲٪ و در نمونه دارای pH=12 برابر ۳٪ بوده است. کاتولینیت دارای سطح مخصوص کمی می‌باشد و اگرچه به دلیل قرارگیری در شرایط اسیدی ساختاری مجتمع و در شرایط قلیایی ساختاری پراکنده دارد؛ لیکن به علت سطح مخصوص کوچک آن نسبت به دیگر کانی‌های رسی، این تغییرات ایجاد شده در ساختار خاک بر اثر تغییرات pH، تأثیر چندانی بر حد روانی نداشته است. نتایج تحقیقات دیگر محققین نیز در خصوص اثر pH بر روی حدود اتربرگ کاتولینیت نشان داده است که حد روانی کاتولینیت به pH آب منفذی بستگی ندارد و علت آن به عدم وابسته بودن حد روانی به تغییرات لایه دوگانه (مضاعف) این کانی نسبت داده شده است (Gori, ۱۹۹۴).



شکل ۳- تغییرات حدود اتربرگ نمونه‌های رسی کاتولینیت در pH های ۳، ۵، ۹ و ۱۲

از یک سو در شرایط اسیدی، به علت ایجاد ساختار درهم، سطح مخصوص نمونه رسی تا حدودی کاهش می‌یابد در نتیجه بخشی از بار منفی رس خنثی شده و حد روانی کاهش می‌یابد و از سوی دیگر با مجتمع شدن ساختار در شرایط اسیدی، آب بین حفرات افزایش یافته و حد روانی افزایش می‌یابد. توازن نسبی این دو

ذرات را می‌توان تعیین کرد (Yong و Ouhadi, ۲۰۰۷). از آنجاکه شدت و موقعیت قله‌های پراش پرتو ایکس کانی‌های رسی متناسب با چگونگی قرارگیری پولک‌ها و تغییر در ضخامت لایه دوگانه آن‌ها تغییر می‌کند، این روش می‌تواند تا حدود زیادی بازگو کننده تغییرات رفتاری خاک‌های رسی در شرایط مختلف زیست‌محیطی باشد (اوحدی و چوپچیان‌لنگرودی، ۱۳۹۰).

در این پژوهش با انجام پراش پرتو ایکس (XRD)، چگونگی تغییر در ساختار خاک کائولینیت از منظر ریزساختاری با تغییر در pH اولیه آن مورد بررسی قرار گرفت. شکل (۶) نشان‌دهنده نتایج آزمایش پراش پرتو ایکس بر روی نمونه خالص کائولینیت و نمونه‌های کائولینیت با pHهای اولیه تثبیت شده است.

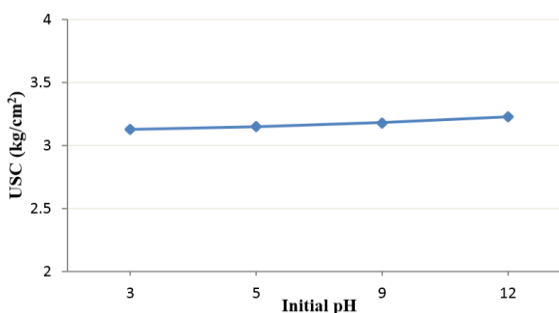
همان‌طور که نتایج ارائه شده در شکل (۶) نشان می‌دهد مقدار فاصله اصلی $d_{001}=7.12 \text{ \AA}$ مربوط به کانی کائولینیت و مقدار فاصله $d_{002}=3.56 \text{ \AA}$ مربوط به موقعیت قله دوم نظیر کانی کائولینیت است. همچنین مقدار شدت قله نظیر فاصله‌های $d_{001}=4.26 \text{ \AA}$ و $d_{001}=3.32 \text{ \AA}$ مربوط به کانی کوارتز می‌باشد. به‌منظور امکان مطالعه بهتر تأثیر تغییرات pH کائولینیت بر خصوصیات ریزساختاری آن، نتایج مربوط به تغییرات شدت قله اصلی نظیر کائولینیت ($d_{001}=7.12 \text{ \AA}$) در اثر تغییرات pH (۳، ۵، ۹ و ۱۲)، از شکل (۶) استخراج و در شکل (۷) ترسیم شده است. همان‌طور که نتایج ارائه شده در شکل (۷) نشان می‌دهد، شدت قله اصلی نظیر کائولینیت در نمونه‌های رسی در pHهای ۳، ۵ و ۱۲ نسبت به نمونه رسی کائولینیت طبیعی (pH=9) به ترتیب ۳، ۷، و ۷ درصد افزایش داشته است. در فرایند تغییرات ریزساختار کانی‌های رسی در شرایط قلیائی و اسیدی انتظار می‌رود که در شرایط قلیائی با پراکنده‌تر شدن ساختار، شدت قله نظیر کانی رسی افزایش و در شرایط اسیدی با ایجاد ساختار پراکنده، شدت قله نظیر کانی رسی کاهش یابد (Ouhadi and Yong, ۲۰۰۷).

افزایش ۷ درصدی شدت قله نظیر کائولینیت در نمونه دارای pH=9 بر اساس استدلال فوق قابل توجیه است. از آنجاکه حضور شرایط اسیدی در نمونه رسی سبب حل شدن بخش کربنات کلسیم خاک می‌شود به نظر می‌رسد بر اثر حل‌شدگی بخش کربنات کلسیم خاک و امکان انعکاس بهتر اشعه ایکس تابیده شده به خاک، با وجود انتظار برای کاهش شدت اشعه باز تابیده شده ناشی از ساختار مجتمع، یک افزایش جزئی در شدت قله اصلی نظیر کائولینیت مشاهده می‌شود که عمدتاً ناشی از حل‌شدگی کربنات پوشش داده‌شده بر سطح پولک‌های رسی است.

پولک‌های رسی در محیط اسیدی به دلیل ایجاد ساختار مجتمع (نتایج ارائه شده در شکل (۲)) به یکدیگر نزدیک‌تر شده و با بزرگ‌تر شدن ابعاد ذرات، تراکم خاک تسهیل می‌یابد و زمینه لازم برای افزایش وزن مخصوص خاک فراهم می‌شود. با این وجود به علت عدم تغییر قابل توجه در قابلیت نگهداری آب در خاک (نتایج ارائه شده در شکل (۳))، میزان تغییر در حداکثر وزن مخصوص خاک قابل توجه نبوده و برای نمونه‌های کائولینیت در محیط اسیدی نسبت به محیط بازی، حداکثر فقط ۳٪ افزایش تراکم مشاهده شده است. به بیان دیگر با وجود تغییرات محسوس در دانه‌بندی، این اختلافات در تراکم ناچیز بوده است.

با استفاده از نتایج درصد رطوبت بهینه به دست آمده از آزمایش حداکثر وزن مخصوص خشک، آزمایش تک‌محوری نمونه‌های رسی کائولینیت در pHهای ۳، ۵، ۹ و ۱۲ به روش دانسیته کنترل انجام شد که نتایج در شکل (۵) ارائه شده است. آزمایش‌ها بر اساس استاندارد ASTM D2166 و بر نمونه‌های استوانه‌ای به قطر ۳۵ میلی‌متر و ارتفاع ۸۰ میلی‌متر انجام شده است.

بر اساس نتایج ارائه شده در شکل فوق، حداقل و حداکثر مقاومت فشاری تک‌محوری به ترتیب مربوط به نمونه دارای pH=3 و نمونه دارای pH=12 بوده که دارای اختلافی ۳٪ می‌باشد. همان‌طور که در نتایج ارائه شده در شکل (۵) نمایان است تغییر pH بر مقاومت فشاری تک‌محوری نمونه‌های رسی در pHهای ۳، ۵، ۹ و ۱۲ تأثیر قابل توجهی نداشته است و این اختلاف (۳٪) در مقابل تغییرات بیش از ۵۲٪ در اندازه دانه‌های رسی، ناچیز و نامحسوس است.



شکل ۵- تغییرات تک‌محوری نمونه‌های رسی کائولینیت در pHهای ۳، ۵، ۹ و ۱۲

از منظر ریزساختاری، پراش پرتو ایکس از دیرباز برای شناسایی نوع، میزان، و ساختار کانی‌های رسی مورد استفاده قرار گرفته است (Yong و همکاران، ۱۹۹۲). با مقایسه نتایج مقادیر اندازه فاصله پایه با مقادیر پیش فرض مربوط به کانی‌های شناخته شده و نیز تعیین تغییرات شدت طیف خروجی، نوع کانی و آرایش

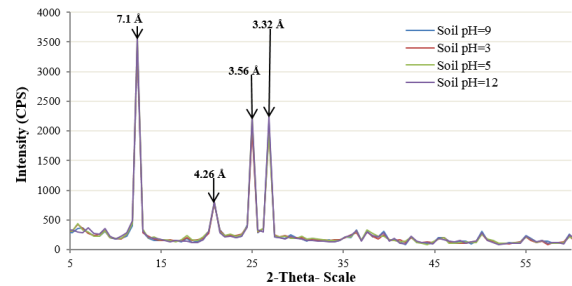
۲) با تغییر pH اولیه نمونه رسی کائولینیت، تغییرات در نتایج آزمایش‌های ژئوتکنیکی نظیر حد روانی، دامنه خمیری، حداکثر وزن مخصوص خشک، و مقاومت تک‌محوری بسیار ناچیز و حداکثر تا ۰.۴٪ بوده است. در واقع با وجود تغییرات محسوس در نتایج حاصل از دانه‌بندی، تغییرات در نتایج حاصل از آزمایش‌های ژئوتکنیکی بسیار محدود بوده و قابل صرف نظر کردن است. به‌طور کلی نتایج منحنی دانه‌بندی نسبت به دیگر نتایج در برابر تغییرات pH اثرپذیر است.

۳) نتایج حاصل از پراش پرتو اشعه ایکس نشان می‌دهد، شدت قله نظیر کائولینیت در pH های ۳، ۵ و ۱۲ نسبت به نمونه کائولینیت طبیعی (pH=9) به ترتیب ۳٪، ۷٪ و ۱۲٪ افزایشی بوده است. به بیان دیگر براساس نتایج آزمایش XRD، در نمونه‌های رسی کائولینیت در اثر تغییرات pH، تغییرات ریزساختاری کائولینیت بسیار کم و قابل صرف نظر بوده است. به طوری که اگرچه بر اساس نتایج آزمایش دانه‌بندی یک تغییر در اندازه ذرات کائولینیت مشاهده شده است لیکن این تغییر در دیگر نتایج آزمایشات ژئوتکنیکی و یا ریزساختاری اثرگذار نبوده است.

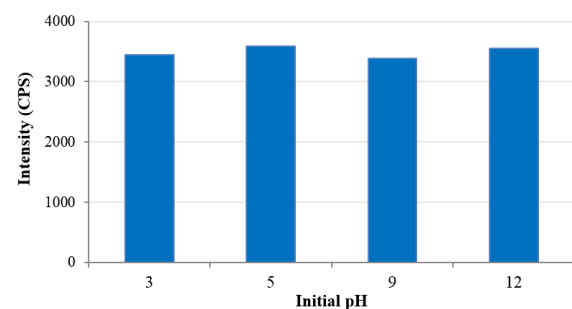
۴) وجود تغییرات جزئی در نتایج آزمایشات ژئوتکنیکی و ریزساختاری نمونه‌های کائولینیت دارای مقادیر pH مختلف در این تحقیق در مقایسه با تغییرات قابل توجه در نتایج آزمایشات ریزساختاری و درشت ساختاری بخش مونت‌موریلونیت نمونه‌های بنتونیت در شرایط اسیدی و بازی، بیانگر ثبات مناسب‌تر خصوصیات اولیه کائولینیت در شرایط اسیدی و بازی مختلف در مقایسه با نمونه‌های مونت‌موریلونیت است. این موضوع تأیید کننده استفاده از کائولینیت به‌عنوان یکی از لایه‌های تحتانی مناسب در مراکز دفن زباله‌های شهری و صنعتی است. به طوری که در صورت استفاده از کائولینیت به‌عنوان یکی از لایه‌های محافظ مراکز دفن زباله، با تغییر شرایط pH اولیه خاک، تغییر کم‌تری در خصوصیات مهندسی خاک، مورد انتظار خواهد بود و بنابراین ریسک کم‌تری در انتقال آلودگی ناشی از تغییر خصوصیات خاک وجود خواهد داشت.

۵- مراجع

احمدی م م، حسنلوراد م، خاتمی س م ح، "بررسی اثر تغییرات درجه pH شیرابه بر خصوصیات فیزیکی و مکانیکی خاک رس کائولینیت در حضور بنتونیت"، نشریه علمی پژوهش-های تجربی در مهندسی عمران، ۱۳۹۴، ۲، ۳۳-۲۵.
اوحدی و ر، چوپچیان لنگرودی س ا، "تأثیر ظرفیت و غلظت کاتیون بر نتایج آنالیز پرتو ایکس کانی رسی اسمکتیت"، مجله بلورشناسی و کانی‌شناسی ایران، ۱۳۹۰، ۲۸۰-۲۷۱.



شکل ۶- نتایج آزمایش XRD برای نمونه کائولینیت طبیعی و نمونه‌های با pH اولیه تثبیت شده



شکل ۷- تغییرات شدت قله نظیر $d_{001}=7.12 \text{ \AA}$ نمونه‌های رسی کائولینیت دارای pH های ۳، ۵، ۹ و ۱۲

این در حالی است که نتایج تحقیقات قبلی نشان داده است که رس بنتونیت با تغییر شرایط pH اولیه و در شرایط اسیدی و قلیایی ناشی از اضافه نمودن هیدروکلریک اسید و سدیم هیدروکسید به خاک، تغییر ۵۰ درصدی در شدت قله نظیر کانی مونت‌موریلونیت^۷ را تجربه می‌کند (اوحدی و شعبانیان، ۱۳۹۴). به بیان دیگر درحالی‌که دامنه تغییر خصوصیات ژئوتکنیکی و ژئوتکنیک زیست‌محیطی کائولینیت در شرایط اسیدی و قلیایی مختلف تغییر بسیار محدودی دارد، این تغییرات برای کانی مونت‌موریلونیت بسیار قابل توجه است. ثبات نسبی خصوصیات رفتاری کائولینیت در شرایط زیست‌محیطی مختلف از مهم‌ترین ویژگی‌های کاربردی کائولینیت در مقایسه با مونت‌موریلونیت در تحقیقات قبلی محققین، مورد توجه کم‌تری قرار گرفته است.

۴- نتیجه‌گیری

از مجموعه آزمایشات انجام شده در این تحقیق نتایج زیر قابل اخذ می‌باشد.

۱) تغییر pH اولیه نمونه رسی کائولینیت در منحنی دانه‌بندی در محدوده pH های ۳، ۵، ۹ و ۱۲، منجر به تغییرات بیش از ۵۲٪ در ذرات هم‌اندازه رس نمونه‌های مورد مطالعه شده است.

- Ouhadi VR, Yong RN, "Experimental study on instability of bases on natural", *Applied Clay Science*, 2007, 238-249.
- Ouhadi VR, Yong RN, "Study of transformation of clay minerals in the interaction process with additives by use of scanning electron microscope and XRD and its relation to mechanical behavior", *Iran Journal Crystallography Mineral*, 2003, 10 (1), 87-97.
- Reeves GM, Sims I, Cripps JC, "Clay Materials Used in Construction", Cromwell Press, Trowbridge, UK, p. 525, 2006.
- Santamarina JC, Klein KA, Palomino A, Guimaraes MS, "Micro-scale aspects of chemo-mechanical coupling: Inter-particle forces and fabric. In: Di Maio, Hueckel and Loret (eds) Chemo-mechanical coupling in clays", *From Nano-Scale to Engineering Applications*", Swets and Zeitlinger, Lisse, 2002.
- Stumm W, "Chemistry of the solid-water influence John Wiley & Sons", Inc., New York. 428p, 1992.
- Yong RN, Mohamed AMO, Warketin BP, "Principles of contaminant transport in soils", Elsevier, Holland, 1992.
- Wang YH, Siu WK, "Structure characteristics and mechanical properties of kaolinite soils I. Surface charges and structural Characterizations", *Canadian Geotechnical Journal*, 2006, 43 (6), 587-600.
- اوحدی و.ر، شعبانیان م.ر، "تأثیر تغییر pH اولیه بنتونیت بر برخی مشخصات ژئوتکنیکی و ژئوتکنیک زیست‌محیطی آن"، دهمین کنگره بین‌المللی مهندسی عمران.
- اوحدی و.ر، بهادری‌نژاد ا.ر، امیری م، "مطالعه نگهداشت آلاینده سرب در نمونه‌های کائولینیت حاوی درصد‌های مختلف کربنات طی فرایندهای جذب و الکتروسینتیک"، مجله مهندسی عمران مدرس، ۱۳۹۳، ۱۴ (۳)، ۱۷-۳۰.
- اوحدی و.ر، گودرزی ا.ر، "تأثیر تغییر خصوصیات مایع منفذی و افزایش درجه حرارت بر پارامترهای ژئوتکنیکی و ژئوتکنیک زیست‌محیطی رس اسمکتیت"، نشریه مهندسی عمران و محیط زیست دانشگاه تبریز، ۱۳۹۳، ۴۴ (۳)، ۱۷-۲۵.
- اوحدی و.ر، فخیم‌جو م.س، امید نائینی س.ت، "مقایسه نحوه تغییرات رفتار خمیری و نفوذپذیری بنتونیت در حضور آلاینده‌های آلی و فلز سنگین"، نشریه مهندسی عمران و محیط‌زیست دانشگاه تبریز، ۱۳۹۵، ۴۶ (۴)، ۲۵-۳۶.
- تابع بردبارع، رئیسی استبرق ع، غازیانی ف، "استفاده از روش الکتروکینتیک در پاکسازی یک خاک رسی آلوده به MTBE"، نشریه مهندسی عمران و محیط زیست دانشگاه تبریز، ۱۳۹۴، ۴۵ (۲)، ۲۵-۳۳.
- American Society for Testing and Materials, ASTM, Annual Book of ASTM Standards, Philadelphia, 1994, 4, 08.
- Brady PV, Walther JV, "Controls on silicate dissolution rates in neutral and basic pH solutions at 25°C", *Geochim Cosmochim Acta* 53, 1989, 2823-2830.
- Chemeda YC, Deneele D, Christidis GE, Ouvrard G, "Influence of hydrated lime on the surface properties and interaction of kaolinite particles", *Applied Clay Science*, 2015, 107, 1-13.
- Cherian C, Kollannur NJ, Arnepalli DN, "Calcium absorption on clays: Effects of mineralogy", pore fluid chemistry and temperature, *Applied Clay Science*, 2018, 160, 282-289.
- Essington ME, "Soil and Water Chemistry", An Integrative Approach, CRC Press, p.534, 2005.
- Gajo A, Maines M, "Mechanical effects of aqueous solutions in organic acids and bases on a natural active clay", *Geotechnique*, 2007, 57 (8), 687-699.
- Gori U, "The pH influence on the index properties of clays", *Bulletin of International Association Engineering Geology*, 50, 1994, 37-42.
- Gratchev IB, Sassa K, "Cyclic behavior of fine-grained soils at different pH values", *Journal of Geotechnical and Geoenvironmental Engineering*, 2009, 135 (2), 271-279.
- Hesse PR, "A textbook of soil chemical analysis", William Clowes and Sons, 1971, 519.
- Mitchell J, "Chemical effects on clay Hydraulic conductivity", 1995.

EXTENDED ABSTRACT

Impact of pH Variations of Kaolinite upon Some of its Geotechnical and Geo- Environmental Properties

Vahid Reza Ouhadi ^{a*}, Zahra Qarelou ^b, Foad Nadery ^b

^a Faculty of Civil Engineering Bu- Ali Sina University, Iran; School of Civil Engineering, University of Tehran, Iran

^b University College of Omran and Tosseh, Hamedan, Iran

Received: 12 September 2018; **Accepted:** 15 July 2019

Keywords:

Kaolinite, Initial pH, Geotechnical Properties, Geo-Environmental Properties, Microstructural Stability.

1. Introduction

The use of clayey soils as clay barriers in landfills is very common. This is due to the suitable adsorption, buffering capacity, and water retention of clays (Yong et al., 1992). However, changes in the geotechnical and microstructural properties of clayey soils in acidic and alkaline conditions have caused many challenges in the application of clayey soils in these projects (Cherian, 2018). In industrial regions, soils are subjected to acidic rains; therefore, they usually encounter acidic conditions. On the other hand, in humidity condition areas, due to the evaporation of soil pore fluid, soils usually run into alkaline conditions. These environmental conditions have caused the soils to have different initial pH backgrounds (Chemed, 2015). These changes in the pH of clayey soils may cause some changes in the geotechnical and geo-environmental properties of soil. Such a change can affect the long durability of barrier properties. In spite of several researches which have been performed on the geo-environmental properties of clayey soil, the review of the previous researches shows that there is a lack of extensive research on the subject of pH effect of clay on its properties and behaviour (Ouhadi and Yong, 2003). In addition, in recent years, the use of kaolinite as the lowest barrier clay layer in landfills has increased. Therefore, the main objective of this paper is to investigate the impact of pH variations of kaolinite upon some of its geotechnical and geo-environmental properties.

To achieve this objective in this research, with the addition of acid and alkaline to kaolinite, several soil samples with different initial pH were prepared. Then, with the application of a series of microstructural and macro-structural experiments such as Atterberg limits, grain size distribution, unconfined compression strength, and XRD experiments on kaolinite samples having different initial pH (3, 5, 9, and 12), the variations of some of its geotechnical and geo-environmental properties are investigated.

2. Methodology

Kaolinite is known as a pH-dependent mineral (Wang and Siu, 2006). The kaolinite sample of this research is called Super Zenous kaolinite which has been taken from North West of Iran. In this research, HCl and NaOH has been used to adjust the pH of kaolinite samples in different acidic and alkaline levels. Atterberg limits, proctor tests, grain size distribution measurements, and unconfined compression experiments were performed to address the impact of the initial pH of kaolinite on its mechanical properties. In addition, a series of XRD tests were implemented to investigate the influence of pH variations upon the microstructure of kaolinite.

* Corresponding Author

E-mail addresses: vahidouhadi@yahoo.ca (Vahid Reza Ouhadi), zahraqarelou@ymail.com (Zahra Qarelou), foad.naderi70@gmail.com (Foad Nadery).

3. Results and discussion

The achieved results indicate that even though the change in initial pH of kaolinite makes more than 52% changes in its grain size distribution curve (Fig. 1), with the change of initial pH of kaolinite from acidic to alkaline conditions, the results of geotechnical experiments such as liquid limit, plasticity index, unconfined compression strength have shown only 3%, 4%, and 3%, increase, respectively. The maximum dry density of soil reduces only 3% by changing the initial pH of kaolinite. Furthermore, the results of XRD experiments on kaolinite samples with different initial pH show that the intensity of major reflection line of kaolinite in soil pH of 3, 5, and 12 in comparison to that of for natural kaolinite (pH=9), show only 3%, 7%, and 7% increase, respectively.

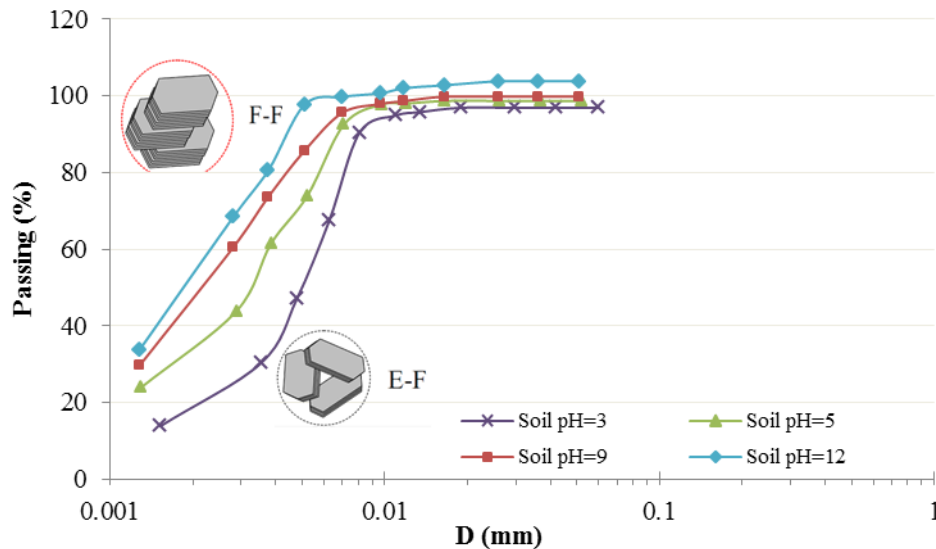


Fig. 1. Variations of the grain size distribution of kaolinite at pH 3, 5, 9, and 12.

4. Conclusions

Based on the experimental results of this research, it is concluded that in spite of some changes on the results of grain size distributions, the changes in the results of geotechnical and geo-environmental properties of kaolinite at different pH conditions are very low and negligible. Based on the results of this paper, it seems that due to the stability of the geotechnical and microstructural properties of kaolinite in acidic and alkaline conditions, the use of kaolinite as the lowest clay barrier of industrial and municipal landfills has a suitable justification specifically in the application of kaolinite with layers of bentonite.

5. References

- Cherian C, Kollannur NJ, Arnepalli DN, "Calcium absorption on clays: Effects of mineralogy, pore fluid chemistry and temperature", *Applied Clay Science*, 2018, 160, 282-289.
- Chemeda YC, Deneele D, Christidis GE, Ouvrard G, "Influence of hydrated lime on the surface properties and interaction of kaolinite particles", *Applied Clay Science*, 2015, 107, 1-13.
- Ouhadi VR, Yong RN, "Experimental and theoretical evaluation of impact of clay microstructure on the quantitative mineral evaluation by XRD analysis", *Applied Clay Science Journal*, 2003, 23, 141-148.
- Wang YH, Siu WK, "Structure characteristics and mechanical properties of kaolinite soils I. Surface charges and structural Characterizations", *Canadian Geotechnical Journal*, 2006, 43 (6), 587-600.
- Yong RN, Mohamed AMO, Warketin BP, "Principles of contaminant transport in soils", Elsevier, Holland, 1992.