

POROSITE ACTIVE DANS L'ARGILITE DU CALLOVO-OXFORDIEN

FREE POROSITY IN THE CALLOVO-OXFORDIAN CLAYSTONE

Malik BELMOKHTAR¹, Pierre DELAGE¹, Siavash GHABEZLOO¹, Nathalie CONIL²

¹ Laboratoire Navier/CERMES, Ecole des Ponts ParisTech, Paris, France

² Andra, Bure

RÉSUMÉ – On a récemment montré que 25% de la porosité totale de l'argilite du Callovo-Oxfordien contenait des molécules adsorbées dans les pores intra-plaquettes des smectites. Des mesures poroélastiques récentes ont montré que la porosité à prendre en compte pour un calcul correct du paramètre de Skempton n'est pas la porosité totale, mais la proportion de 75% correspondant à l'eau libre.

ABSTRACT – It has been recently shown that 25% of the total porosity of the Callovo-Oxfordian claystone was composed of water molecules adsorbed in the intra-platelets pores of the smectites. Based on recent poroelastic data, it is showed that the porosity to use for a correct calculation of the Skempton parameter is not the total porosity, but the 75% proportion corresponding to free water.

1. Introduction

L'état de l'eau dans les sols et roches argileuses est en partie affecté par les interactions eau-argile, avec une distinction entre eau libre et eau adsorbée. L'eau libre a les propriétés physiques classiques de l'eau, ce qui n'est pas le cas de l'eau adsorbée (Baldi et al., 1988). Les calculs poroélastiques sont généralement faits en utilisant les propriétés physiques de l'eau libre. Lorsque, comme dans les argiles, une partie de la porosité contient de l'eau dont l'état physique est affecté par les interactions avec l'argile, la question de la valeur de porosité à adopter dans les calculs poroélastiques se pose.

Ce travail concerne l'argilite du Callovo-Oxfordien (COx), une roche hôte potentielle pour le stockage géologique profond des déchets radioactifs de haute activité en France. Il est basé sur des travaux récents sur l'état de l'eau dans les argilites gonflantes (Menaceur et al., 2016) et sur les propriétés poroélastiques de l'argilite du COx (Belmokhtar et al., 2016). Une meilleure connaissance de la réponse poroélastique de l'argilite du COx est utile pour mieux modéliser la réponse hydromécanique autour des galeries (Gens et al., 2007).

2. Contexte

Le gonflement des argiles et des argilites est dû à la présence de smectites. Les interactions eau-argile dans les smectites ont été étudiées en utilisant des techniques de diffraction des rayons X (Mooney et al 1952, Norrish 1954, Bérend et al 1995, Saiyouri et al 2004, Ferrage et al 2007), qui ont montré que l'adsorption des molécules d'eau sur les faces des smectites lors de l'hydratation à partir d'un état sec, est régie par l'adsorption successive de 1, 2 et 3 molécules d'eau (également appelées états d'hydratation 1W, 2W et 3W). L'hydratation des smectites commence avec une distance inter-basale initiale de 9,6 Å à l'état sec, et de, respectivement, 12,6, 15,6 et 18,6 Å pour les hydratations 1W, 2W et 3W. Le nombre de couches d'eau est contrôlé par la succion imposée, avec 1 couche à plusieurs centaines de MPa (distance de 12,6 Å), 2 couches à plusieurs dizaines de MPa (distance de 15,6 Å) et 3 couches pour des suctions inférieures à 10 MPa (distance de 18,6 Å).

A partir de mesures de porosimétrie au mercure, Menaceur et al., (2016) ont montré que ces mécanismes étaient également valables pour les smectites de l'argilite du COx : la porosité pénétrée par le mercure à la pression maximale de 227,5 MPa (diamètre équivalent 5,5 nm) correspond approximativement au volume d'eau libre contenue dans les pores inter-plaquettes, alors que les pores plus petits à l'intérieur des plaquettes d'argile ne sont pas pénétrés. Ils ont également montré que l'épaisseur des vides intra-plaquettes était régie par les mécanismes d'hydratation nW des smectites, et ont conclu que l'argilite du COx à l'état naturel était dans un état d'hydratation 2W.

Belmokhtar et al. (2016) ont réalisé une détermination détaillée des paramètres poroélastiques de l'argilite du COx dans un cadre isotrope transverse, et isotrope équivalent, montrant que le coefficient de Biot b devrait être supérieur à 0,77.

Ce travail, est basé sur ces deux contributions. Il vise à mieux comprendre la valeur de porosité à considérer dans les calculs poroélastiques pour les roches argileuses gonflantes, afin de prendre en compte les effets de l'eau adsorbée.

3. Matériaux et méthodes

3.1. Argilite du Callovo-Oxfordien

L'argilite du Callovo-Oxfordien est une roche sédimentaire de faible perméabilité ($k = 10 - 20 \text{ m}^2$, Escoffier et al., 2005, Mohajerani et al., 2011, Menaceur et al., 2015) déposée il y a 155 millions d'années. Elle est considérée comme roche hôte potentielle pour le stockage géologique profond des déchets radioactifs à forte activité. Au milieu de la couche de COx (à une profondeur de 490 m), l'argilite du COx est caractérisée par une matrice argileuse (45-50%) contenant 20-30% de carbonates, 20-30% de quartz et une petite fraction de feldspath. La fraction argileuse est composée de 10 à 24% de couches inter-stratifiées d'illite/smectite, de 17 à 21% d'illite, de 3 à 5% de kaolinite et de 2 à 3% de chlorite (Gaucher et al., 2004).

L'éprouvette testé (EST31912c) a été extraite à une profondeur de 490 m dans le laboratoire de recherche souterrain de Bure. L'éprouvette a été taillée à un diamètre de 38 mm à partir d'une carotte de 80 mm de diamètre, excavée perpendiculairement au litage. Sa hauteur a été ajustée à 10 mm avec une scie diamantée. La teneur en eau ($w = 7,45\%$) a été obtenue par pesage avant et après séchage au four pendant 48 h à 105°C . La porosité (17,6%) a été déterminée à partir des mesures de volume par pesée hydrostatique, donnant une valeur du degré de saturation de 94,2%. Une succion de 19,7 MPa a été mesurée à l'aide d'un tensiomètre à point de rosée (WP4C, Decagon Devices). Ce degré de saturation élevé indique que peu d'évaporation s'est produite après carottage, il correspond à un échantillon de bonne qualité.

La courbe porosimétrique d'un échantillon lyophilisé montre (Figure 1, Delage et al., 2014) que la porosité est bien définie autour d'un diamètre moyen d'entrée de 32 nm, avec une porosité pénétrée de 0,130, une porosité totale de 0,174, définissant une infra-porosité de 0,034. Comme l'ont montré Menaceur et al. (2016), ce diamètre moyen caractérise la porosité inter-plaquettes. En se basant sur un modèle simplifié de la microstructure en brique (Yven et al., 2007), ce diamètre peut être relié à une épaisseur moyenne de 32 nm des plaquettes, ce qui correspond à un nombre moyen de 21 couches avec une hydratation 2W. Menaceur et al. (2016) ont également montré que l'épaisseur moyenne des plaquettes (déduite du diamètre moyen des pores) présentait des variations discrètes par rapport aux changements de succion, en bon accord avec le nombre moyen de couches d'eau observées dans les smectites. Ils en ont conclu que l'eau libre dans l'argile COx est contenue dans la porosité inter-plaquettes définie par la courbe porosimétrique et estimée à environ 75% de la porosité totale, tandis que les 25% restants correspondent à la porosité intra-plaquette avec une hydratation 2W.

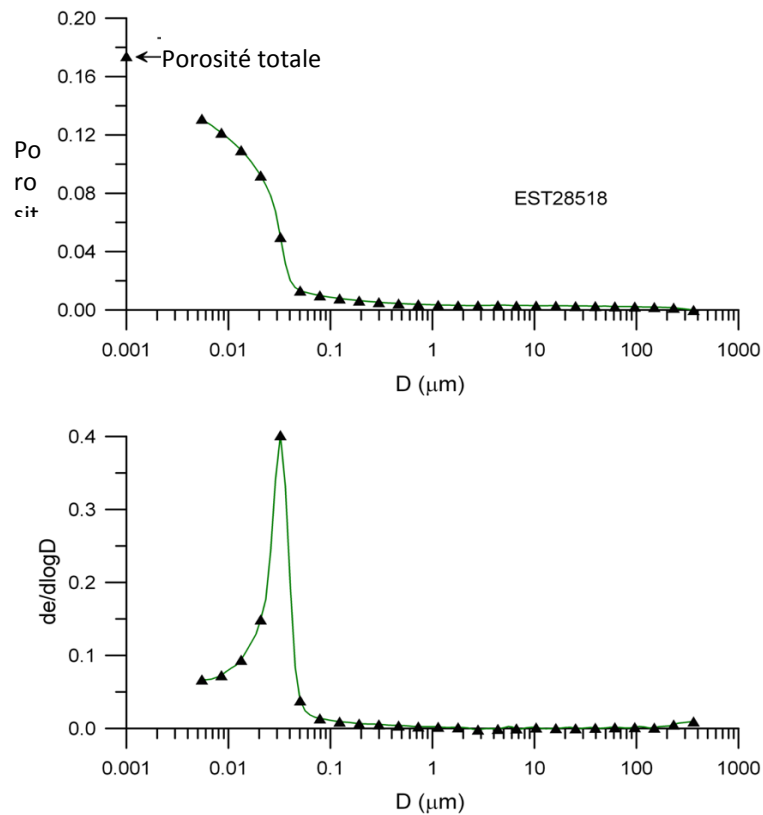


Figure 1. Courbe porosimétrique de l'argilite du COx (EST28518, Delage et al. 2014).

3.2. Coefficient de Skempton

Pour étudier les propriétés poroélastiques de l'argilite du COx, Belmokhtar et al. (2016) ont utilisé une cellule de compression isotrope (Figure 2) reliée à deux contrôleurs de pression-volume (CPV de marque GDS).

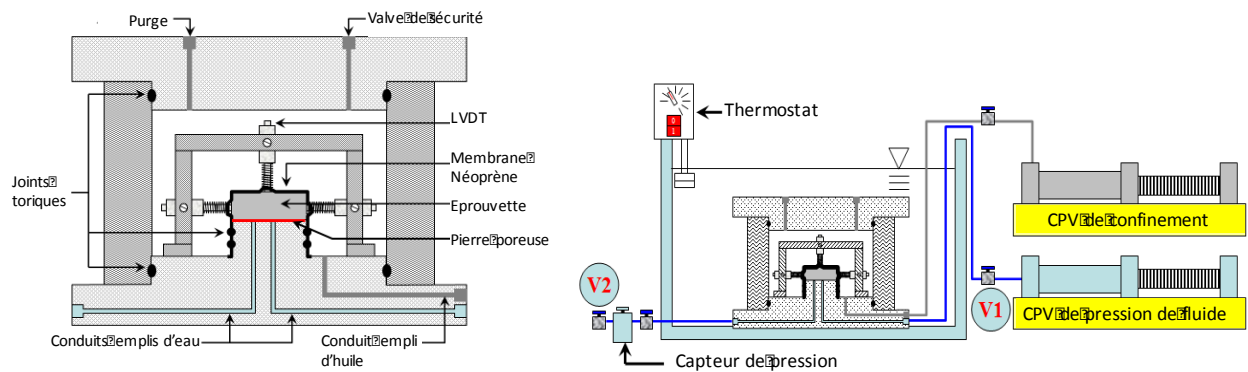


Figure 2. Cellule de compression isotrope et système de mise en pression (Belmokhtar et al. 2016).

La cellule contient un échantillon de 38 mm de diamètre, et dispose de LVDTs pour les mesures locales des déplacements axiaux et radiaux. Une attention particulière a été portée à la réalisation d'une saturation satisfaisante de l'éprouvette, dans des conditions de contraintes proches des conditions in situ, avec un gonflement minimisé et un drainage satisfaisant. Comme le montre la figure 2b, un bon contrôle de la température ($25^{\circ}\text{C} \pm 0,1^{\circ}\text{C}$) a été assuré grâce à un bain thermostaté. Les variations de pression interstitielle sont mesurées par un capteur de pression placé à l'extérieur du bain.

Le coefficient de Skempton ($B = \Delta u / \Delta \sigma$) est défini, pendant une compression non drainée, comme le rapport de l'augmentation de la pression interstitielle Δu générée par une augmentation de la pression de confinement $\Delta \sigma$. Dans un milieu poroélastique classique, B est défini comme suit :

$$B = \frac{\frac{1}{K_d} - \frac{1}{K_s}}{\frac{1}{K_d} - \frac{1}{K_s} + \phi \left(\frac{1}{K_w} - \frac{1}{K_s} \right)} \quad (1)$$

où ϕ est la porosité, K_d est le module de compression drainé, K_s celui de la phase solide (déterminé par un essai de compression sans membrane) et K_w celui de l'eau. Dans les roches poreuses sans interaction solide/eau (grès, calcaires, craie, voir Hu et al 2010, Ghabezloo et al., 2009), K_w et ϕ correspondent à l'eau libre. Ce n'est pas nécessairement vrai dans les roches argileuses gonflantes, dans lesquelles une partie de l'eau est affectée par les interactions smectite/eau.

Comme l'ont montré Bishop (1976) et Ghabezloo et Sulem (2010), il est difficile de réaliser un essai parfaitement non drainé, en raison des effets parasites induits par les transferts d'eau entre l'eau interstitielle et le système de drainage poreux (disque poreux et conduits). Les corrections nécessaires pour la cellule considérée ont été décrites en détail dans Belmokhtar et al. (2016).

3.3. Chemin de contrainte

Le programme expérimental visant à déterminer les paramètres poroélastiques de l'argilite du COx a été décrit dans Belmokhtar et al. (2016).

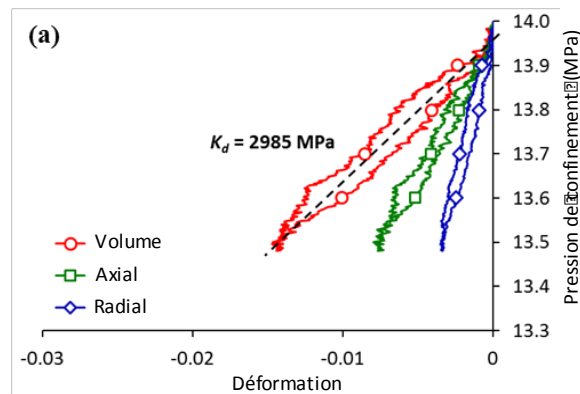


Figure 3. Cycles de compression isotrope drainée (EST31912c).

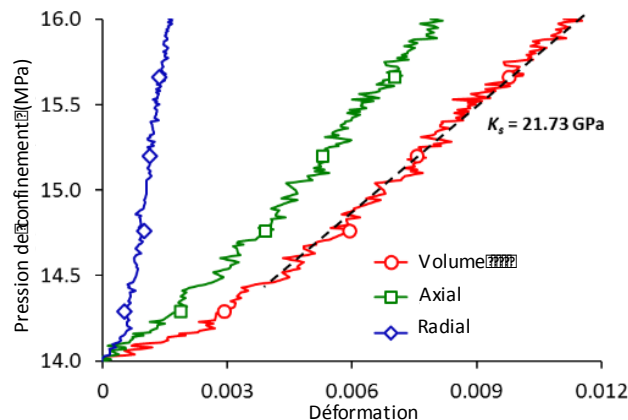
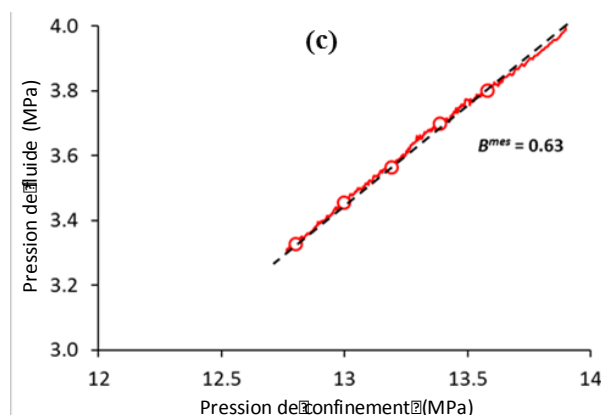


Figure 4. Essai de compression sans membrane (EST31912c).

Figure 4. Coefficient B de Skempton, EST31912c.

Seules les données expérimentales pertinentes fournissant les paramètres K_d et K_s impliqués dans l'expression de B (Eq.1) sont présentées ici. L'essai consistait en :

- une compression drainée entre 12 et 14 MPa (taux de 0,5 kPa/min), tout en maintenant la contre-pression à 4 MPa ;
- un essai cyclique drainé (0,5 kPa/min), dans lequel la contrainte de confinement a été abaissée à 13,5 MPa et ramenée à 14 MPa, ce qui a donné une valeur K_d de 2985 MPa (Figure 3) ;
- un essai dans lequel la pression interstitielle a été augmentée de 4 à 4,8 MPa sous une contrainte totale constante de 14 MPa, donnant un module de Biot $H = 3470$ MPa ;
- un essai de compression sans membrane, avec des changements simultanés de la pression interstitielle et de la pression de confinement entre 14 et 16 MPa, donnant $K_s = 21,73$ GPa (Figure 4) ;

Un test de déchargement isotrope non drainé de 13,9 à 12,8 MPa avec des mesures de pression interstitielle (Figure 5) donne une valeur mesurée B_{mes} du coefficient de Skempton de 0,63, correspondant à une valeur corrigée $B = 0,84$, comparable à celles obtenues par Mohajerani et al. (2012) dans le même dispositif et par Mohajerani et al. (2013) dans une cellule à cylindre creux.

4. Porosité active

L'équation 1 montre que B dépend des paramètres K_d , K_w et K_s , ainsi que de la porosité ϕ . Elle est établie dans les milieux poreux sans interaction entre l'eau et la phase solide, comme par exemple dans les calcaires ou les grès. Dans l'argilite du COx, on a vu que les interactions argile-eau affectent une proportion d'eau interstitielle d'environ 25% (Menaceur et al., 2016).

Les valeurs de B obtenues dans ce travail et dans Mohajerani et al. (2013) sont comparées dans le Tableau 1 à celles calculées par l'équation (1), en utilisant soit la porosité totale, soit celle correspondant à la porosité libre estimée de l'argile COx (75% de la porosité totale).

Tableau 1. Effet de la porosité sur la valeur du coefficient de Skempton B .

	Porosité totale (ϕ_T)		Porosité active (ϕ_{Ac})		B mesuré
	ϕ_T	B^{calc}	ϕ_{ac}	B^{calc}	
Ce travail	17,6	0,800	13,20	0,843	0,84
Mohajerani et al. (2013)	17,7	0,838	13.28	0,873	0,87

On observe que les valeurs de B calculées en utilisant la porosité totale donnent des valeurs sous-estimées, alors que celles calculées en utilisant la porosité libre estimée sont en bon accord avec les valeurs mesurées. Cette observation macroscopique confirme donc les considérations microscopiques faites sur les proportions respectives d'eau libre et adsorbée.

5. Conclusion

La réponse mécanique des sols et roches argileuses gonflants est connue pour être influencée par les interactions argile-eau le long des faces des smectites, en relation avec la présence d'eau libre et adsorbée. Les résultats présentés dans ce travail proviennent d'une récente contribution de Menaceur et al. (2016), qui a montré que les mécanismes d'hydratation nW gouvernent l'hydratation et le gonflement de l'argile Callovo-Oxfordien et que deux couches de molécules d'eau sont adsorbées le long des faces des smectites à l'état initial. Ceci a permis de distinguer l'eau libre, située dans la porosité inter-plaquettes et correspondant à environ 75% de la porosité totale, de l'eau adsorbée située à l'intérieur des plaquettes le long des faces des smectites, correspondant à 25% de la porosité totale. Le présent travail est également basé sur Belmokhtar et al. (2016), qui a déterminé avec précision l'ensemble des paramètres poroélastiques de l'argilite du COx.

En comparant la valeur théorique du coefficient B de Skempton à la valeur expérimentale obtenue à partir d'un essai de compression isotrope non drainée, on a montré que l'utilisation de la porosité totale avait tendance à sous-estimer la valeur du coefficient de Skempton. En revanche, la porosité inter-plaquettes, correspondant à 75% de la porosité totale et déterminée par intrusion de mercure, fournit des valeurs correctes de B . Il est intéressant de constater que cette conclusion est compatible avec celles tirées de l'étude d'autres matériaux poreux dans lesquels les interactions eau/minéraux sont importantes, comme les pâtes de ciment (Scherer et al., 2007, Sun et Scherer 2010a et b).

6. Références bibliographiques

- Baldi G, Hueckel T, Pellegrini R (1988). Thermal volume changes of the mineral – water system in low-porosity clay soils. *Canadian Geotechnical Journal* 25, 807–825.
- Belmokhtar M, Delage P, Ghabezloo S, Tang AM and Conil N (2016). Poroelasticity of the Callovo-Oxfordian claystone. *Rock Mechanics and Rock Engineering*, 50(9), 2297–2309.
- Bérend I, Cases JM, François M, Uriot JP, Michot LJ, Masion A, Thomas F (1995). Mechanism of adsorption and desorption of water vapour by homoionic montmorillonites: 2. The Li^+ , Na^+ , K^+ , Rb^+ and Cs^+ exchanged forms. *Clays and Clay Minerals* 43:324–336
- Bishop AW (1976). The influence of system compressibility on the observed pore-pressure response to an undrained change in stress in saturated rock. *Géotechnique* 26:371–375.
- Escoffier S, Homand F, Giraud A, Hoteit N and Su K (2005). Under stress permeability determination of the Meuse/Haute-Marne mudstone. *Engineering Geology* 81(3):329–40.
- Delage P, Menaceur H, Tang A-M, Talandier J (2014). Suction effects in deep Callovo-Oxfordian claystone Suction effects in deep Callovo-Oxfordian claystone. *Géotechnique Letters* 4:267–271.
- Ferrage E, Kirk CA, Cressey G, Cuadros J (2007). Dehydration of Ca-montmorillonite at the crystal scale. Part I: Structure evolution. *American Mineralogist* 92:994–1006.
- Gaucher E, Robelin C, Matray JM, et al (2004). ANDRA underground research laboratory: Interpretation of the mineralogical and geochemical data acquired in the Callovian-

- Oxfordian formation by investigative drilling. *Physics and Chemistry of the Earth* 29:55–77.
- Gens, A, Vaunat, J, Garitte, B and Wileveau, Y (2007). In situ behaviour of a stiff layered clay subject to thermal loading: observations and interpretation. *Géotechnique* 57, No. 2, 207–228
- Ghabezloo S, Sulem J (2010). Effect of the volume of the drainage system on the measurement of undrained thermo-poro-elastic parameters. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Science* 47:60–68.
- Ghabezloo S, Sulem J, Guédon S, Martineau F (2009). Effective stress law for the permeability of a limestone. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Science* 46:297–306.
- Hu DW, Zhou H, Zhang F, Shao JF (2010). Evolution of poroelastic properties and permeability in damaged sandstone. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Science* 47(6):962–973.
- Menaceur H, Delage P, Tang A-M, Conil N (2015). On the Thermo-Hydro-Mechanical Behaviour of a Sheared Callovo-Oxfordian Claystone Sample with Respect to the EDZ Behaviour. *Rock Mechanics and Rock Engineering* 6–8.
- Menaceur H, Delage P, Tang AM, Talandier J (2016). The Status of Water in Swelling Shales: An Insight from the Water Retention Properties of the Callovo-Oxfordian Claystone. *Rock Mechanics and Rock Engineering*. doi: 10.1007/s00603-016-1065-2
- Mohajerani M, Delage P, Monfared M, et al (2011). Oedometric compression and swelling behaviour of the Callovo-Oxfordian argillite. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Science* 48:606–615.
- Mohajerani M, Delage P, Sulem J, et al (2012). A laboratory investigation of thermally induced pore pressures in the Callovo-Oxfordian claystone. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Science* 52:112–121.
- Mohajerani M, Delage P, Sulem J, et al (2013). The Thermal Volume Changes of the Callovo–Oxfordian Claystone. *Rock Mechanics and Rock Engineering* 47:131–142.
- Mooney RW, Keenan AG, Wood LA (1952). Adsorption of Water Vapor by Montmorillonite. II. Effect of Exchangeable Ions and Lattice Swelling as Measured by X-Ray Diffraction. *Journal of the American Chemical Society* 74:1371–1374.
- Norrish K (1954). The swelling of montmorillonite. *Discussion, Faraday Society* 18:120–133
- Saiyouri N, Tessier D, Hicher PY (2004). Experimental study of swelling in unsaturated compacted clays. *Clay Minerals* 39:469–479.
- Scherer GW, Valenza II JJ, Simmons G (2007). New methods to measure liquid permeability in porous materials, *Cement and Concrete Research* 37 386–397.
- Sun Z, Scherer GW (2010a). Effect of air voids on salt scaling and internal freezing, *Cement and Concrete Research* 40 (2) 260–270.
- Sun Z, Scherer GW (2010b). Pore size and shape in mortar by thermoporometry, *Cement and Concrete Research*, 40, 740-751.
- Yven B, Sammartino S, Geraud Y, et al (2007) .Mineralogy, texture and porosity of Callovo-Oxfordian argillites of the Meuse/Haute-Marne region (eastern Paris Basin). *Mémoires la Société Géologique de France* 0249–7546:73–90.