

# CARACTÉRISATION DE L'ARGILITE DU CALLOVO-OXFORDIEN SOUS DES SOLICITATIONS THERMIQUES

## CHARACTERIZATION OF THE CALLOVO-OXFORDIAN CLAYSTONE UNDER THERMAL SOLICITATIONS

Philippe BRAUN<sup>1,2</sup>, Siavash GHABEZLOO<sup>2</sup>, Pierre DELAGE<sup>2</sup>, Jean SULEM<sup>2</sup>, Nathalie CONIL<sup>3</sup>

<sup>1</sup> Andra, Châtenay-Malabry, France

<sup>2</sup> Laboratoire Navier/CERMES, Ecole des Ponts ParisTech, Paris, France

<sup>3</sup> Andra URL, Bure, France

**RÉSUMÉ** – Une cellule isotrope à haute pression a été utilisée pour soumettre des échantillons de l'argilite du Callovo-Oxfordien à des charges thermiques jusqu'à 90 °C. L'ensemble des données des propriétés thermiques drainées et non drainées obtenues à chaque niveau de température permet d'analyser la compatibilité des paramètres dans un cadre thermo-poro-mécanique.

**ABSTRACT** – A high pressure isotropic cell was utilized to submit samples of the Callovo-Oxfordian claystone to thermal loads up to 90°C. The obtained complete dataset of drained and undrained thermal properties at each temperature level allows analysing the compatibility of parameters in the thermo-poro-mechanical framework.

### 1. Introduction

L'argilite du Callovo-Oxfordien (COx) est considérée comme une roche hôte possible pour le stockage géologique profond des déchets radioactifs en France. L'identification de ses paramètres thermo-poro-élastiques est d'une grande importance pour prédire les déformations de la roche provoquées par la chaleur générée par les colis de déchets exothermiques. Différents auteurs ont effectué, en laboratoire, des expériences drainées et non drainées sur cette roche. Cette étude expérimentale a été réalisée pour compléter les propriétés thermiques trouvées par Mohajerani et al. (2012, 2014) et Belmokhtar et al. (2017a). Deux échantillons de COx ont été testés sur des paliers de chauffage et de refroidissement en utilisant une cellule de chargement isotrope à haute pression (Tang et al., 2008). Cette cellule a été modifiée et utilisée dans des études antérieures de Mohajerani et al. (2012) et Belmokhtar et al. (2017b) et a été améliorée dans cette étude par un système des jauge extensométriques corrigées en fonction de la température. Le dispositif a permis des mesures de déformation précises sur les échantillons, la détermination des coefficients de dilatation thermique drainés et non drainés, ainsi que du coefficient de pressurisation thermique.

### 2. Matériaux et méthodes

#### 2.1. Contexte thermo-poro-élastique

L'argilite du COx est une roche isotrope transverse avec une rigidité plus élevée dans la direction parallèle au plan de stratification. De même, les coefficients de dilatation thermique étaient plus élevés dans la direction perpendiculaire (Chiarelli, 2000; Escoffier, 2002; Andra, 2005; Mohajerani et al., 2012; Zhang et al., 2012; Belmokhtar et al., 2017a,b). Pour des raisons de simplification, nous présentons dans ce travail uniquement les déformations volumiques  $\varepsilon_v = \varepsilon_{ax} + 2\varepsilon_{rad}$ , données par les déformations mesurées dans la direction axiale

$\varepsilon_{ax}$  (perpendiculaire au plan de stratification) et dans la direction radiale  $\varepsilon_{rad}$  (parallèle au plan de stratification) sur un échantillon cylindrique.

Les paramètres thermo-poro-élastiques isotropes linéaires sont analysés à l'aide des équations constitutives poroélastiques, d'abord décrites par Biot et Willis, (1957). Nous exprimons une variation des déformations volumiques par rapport aux variations de la contrainte différentielle isotrope  $\sigma_d$ , de la pression du fluide interstitiel  $p_f$  et de la température  $T$  en tant que somme des dérivées partielles.  $\sigma_d$  est la différence entre la contrainte de confinement totale  $\sigma$  et la pression interstitielle.

$$d\varepsilon_v = \frac{1}{K_d} d\sigma_d + \frac{1}{K_s} dp_f - \alpha_d dT \quad (1)$$

où  $K_d$  est le module de compression drainé,  $K_s$  le module sans membrane, représentatif de la compressibilité de la phase solide, et  $\alpha_d$  le coefficient d'expansion thermique drainé du matériau (Ghabezloo et al., 2009 ; Ghabezloo et Sulem, 2009). À l'état non drainé, la masse de fluide dans les pores du matériau reste constante et l'on obtient un changement de la déformation volumique et de la pression interstitielle:

$$d\varepsilon_v = \frac{1}{K_u} d\sigma - \alpha_u dT \quad dp_f = B d\sigma + \Lambda dT \quad (2)$$

où  $K_u$  est le module de compression non-drainé,  $\alpha_u$  le coefficient de l'expansion thermique non-drainé,  $B$  le coefficient de Skempton et  $\Lambda$  le coefficient de pressurisation thermique (Ghabezloo et al., 2009).

## 2.2. Dispositif expérimental

Dans le dispositif présenté sur la Figure 1, la pression de confinement est appliquée par une pression d'huile par un contrôleur pression-volume (CPV). L'échantillon peut être saturé et soumis à des pressions interstitielles à partir du fond avec un disque poreux, relié à un second CPV. Les faces supérieure et latérale sont entourées d'une membrane néoprène continue. Une ceinture chauffante externe autour de la cellule et reliée à un régulateur PID contrôle la température mesurée par un thermocouple à l'intérieur de la cellule. Les jauge extensométriques axiales et radiales collées directement sur la surface de l'éprouvette permettent des mesures de déformations. Les effets perturbateurs sur les jauge (crées par des variations de la température dans la cellule, de la température ambiante ou de la pression de confinement) sont éliminés par une jauge référentielle collée à un matériau de référence à l'intérieur de la cellule.

Lors des essais de chauffage non drainé, l'étanchéité du système de drainage est souvent un problème. L'expansion des tubes métalliques est supposée créer des microfuites au niveau des raccords, ce qui entraîne une perte de pression et des mesures de pression perturbées. Ce problème n'a cependant pas été rencontré lors des essais de refroidissement.

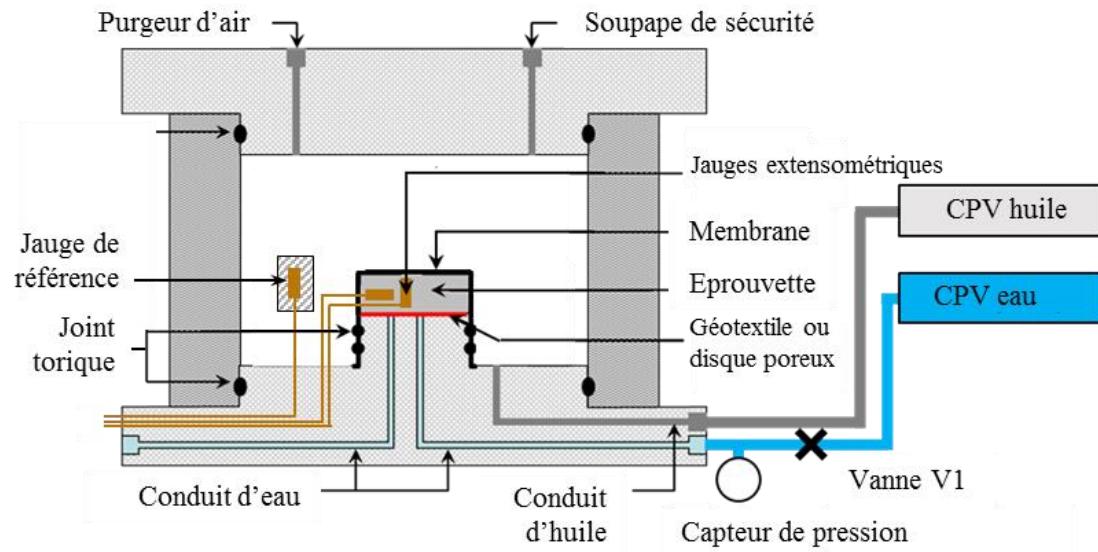


Figure 1. Cellule thermique de compression isotrope (d'après Belmokhtar et al., 2017).

### 2.3. Préparation d'échantillons

Des échantillons de l'argilite du COx sont prélevés dans l'est de la France dans le laboratoire souterrain de l'Andra à environ 500 m de profondeur, et testés en laboratoire. Les deux échantillons étudiés dans ce travail ont été fabriqués à partir de la carotte EST53650. Avant les essais, la masse volumique humide a été déterminée à 2,39 et 2,40 g/cm<sup>3</sup> respectivement pour les échantillons A et B. La teneur en eau  $w = 7,7\%$  et le degré de saturation  $Sr = 94\%$  ont été mesurés sur un fragment de matériau voisin des échantillons.

Les échantillons de 38 mm de diamètre et 10 mm de hauteur ont été montés dans la cellule isotrope et saturés sous la contrainte effective de 8 MPa pour l'échantillon A et de 10,5 MPa pour l'échantillon B. La pression interstitielle et la pression de confinement ont été augmentées à 4 MPa et 12 MPa respectivement pour l'échantillon A, et à 4 MPa et 14,5 MPa respectivement pour l'échantillon B.

### 3. Protocole d'essai

On a préféré un chauffage par paliers à un chauffage monotone comme procédé de chargement pratique, car il permet de distinguer le processus de l'équilibre hydraulique. Les échantillons ont été chauffés rapidement à une certaine température, qui a ensuite été maintenue constante (Figure 2a). Lorsque les déformations de l'échantillon s'arrêtent après un certain temps, on peut supposer que la surpression interstitielle à l'intérieur de l'échantillon s'est dissipée et que les conditions drainées sont satisfaites. Le coefficient de dilatation thermique drainé  $\alpha_d$  peut alors être déterminé. Pendant le chauffage rapide initial, les pressions interstitielles n'ont pas le temps de se dissiper, de sorte qu'un coefficient de dilatation thermique non drainé peut être lu à partir de la tangente sur la déformation volumique. Ce protocole a été utilisé pour tester l'échantillon A.

Pour pouvoir mesurer les pressions interstitielles dans des conditions non drainées et pour déterminer le coefficient de pressurisation thermique, une phase de chauffage non drainée a été ajoutée au protocole (Figure 2b). Ce protocole est comparable à celui de Hart et Wang (2001), appliqué pour des essais mécaniques. Dans cette phase, la vanne V1 (Figure 1) est fermée, de sorte que le fluide interstitiel est isolé du CPV. Il faut noter que le volume de fluide entre l'échantillon et la vanne V1, y compris le transducteur de pression, se déforme pendant les expériences et doit être pris en compte dans la détermination des paramètres non drainés ( $\alpha_u$  et  $\Lambda$ ) sont mesurés lorsque les déformations

dans la phase non drainée se sont stabilisées, et doivent être corrigées par la suite. Après la phase non drainée, la vanne V1 est ouverte, de sorte que la pression interstitielle revient progressivement à sa valeur initiale. Un drainage complet est atteint lorsque les déformations de l'échantillon s'arrêtent. On peut facilement réaliser ensuite d'autres tests à partir du même état de contrainte effective initiale. De plus, il permet d'évaluer le module d'élasticité  $H$ , ainsi que  $\alpha_d$ , en comparant les déformations en état initial, non drainé et drainé. Ce deuxième protocole d'essai a été appliqué sur l'échantillon B. Il est à noter que Hart et Wang (2001) ont utilisé une procédure similaire à ce deuxième protocole.

Lors des expériences sur l'argile COx, au cours du deuxième protocole, le temps d'essai a été rallongé de  $\frac{1}{4}$  (25h environ au total), mais a permis de faire 5 mesures de paramètres de matériaux en un seul test.

On doit noter que le coefficient de l'expansion thermique non drainé tangentiel, qui nécessite un changement de température rapide, n'a pas pu être mesuré pendant le refroidissement avec le dispositif présenté. Aucun système de refroidissement actif n'a été installé, ce qui n'a permis qu'un lent refroidissement passif de la cellule.

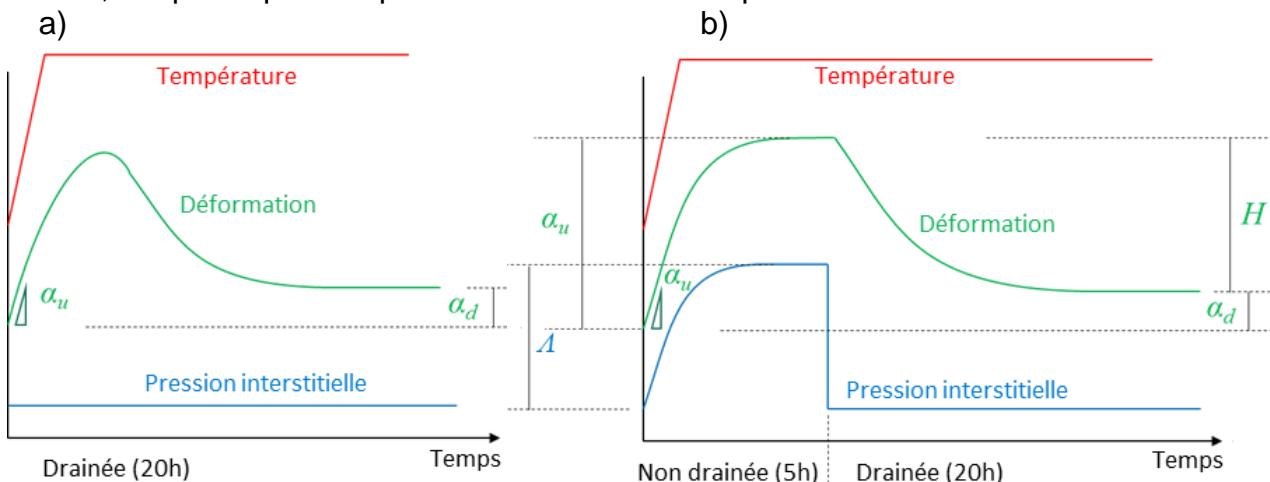


Figure 2. Protocole de chargement réalisé sur l'échantillon A (a) et l'échantillon B (b)

## 4. Résultats

### 4.1. Etalonnage

Avant les essais sur des échantillons du COx, un étalonnage d'après la procédure décrite par Ghabezloo et al., (2009) fournit des informations sur la compressibilité du système de drainage  $c_L = 0.116 \text{ GPa}^{-1}$ , un volume du système de drainage  $V_L = 3000 \text{ mm}^3$ , un volume d'échantillon  $V = 11341 \text{ mm}^3$  et un coefficient de pressurisation thermique du réservoir  $\Lambda_L$ , mesuré sur un étalon en acier sans porosité représenté sur la Figure 3. Pour cette correction, la porosité, le module de compression drainé et le module sans membrane ont été pris approximativement comme  $\phi = 0.18$ ,  $K_d = 2 \text{ GPa}$ ,  $K_s = 22 \text{ GPa}$  (Belmokhtar et al., 2017b). Pour le coefficient de dilatation thermique drainé de l'espace poreux  $\alpha_\phi$ , nous utilisons l'hypothèse  $\alpha_\phi = \alpha_d$ , et insérons des valeurs déterminées plus tard dans les essais thermiques drainés. La compressibilité et le coefficient de dilatation thermique de l'eau interstitielle ont été pris en fonction de la température (Spang, 2002). L'étalonnage permet de corriger le coefficient de dilatation thermique non drainé mesuré, ainsi que le coefficient de pressurisation thermique à l'aide des formules suivantes (Ghabezloo et Sulem, 2010):

$$\Lambda^{corr} = \frac{\Lambda^{mes}}{1 + \frac{V_L(c_f + c_L)}{\phi V(\alpha_f - \alpha_\phi)} (\Lambda_L - \Lambda^{mes})}$$

$$\alpha_u^{corr} = \alpha_\phi + \frac{(\alpha_u^{mes} - \alpha_\phi)}{1 + \frac{V_L(c_f + c_L)}{\phi V(\alpha_f - \alpha_\phi)} \left( \Lambda_L - (\alpha_u^{mes} - \alpha_\phi) \left( \frac{1}{K_d} - \frac{1}{K_s} \right)^{-1} \right)}$$
(3)

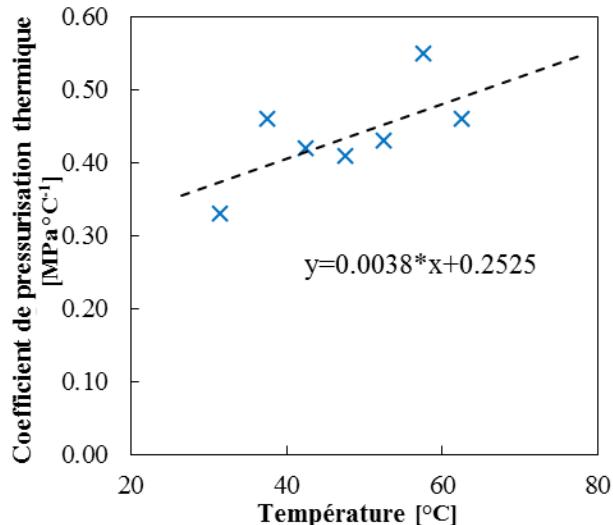


Figure 3. Coefficient de pressurisation thermique mesuré sur un étalon en acier

#### 4.2. Conditions drainées

Les résultats des déformations thermiques drainées mesurées sur les échantillons A et B soumis au chauffage et au refroidissement sont représentés sur la Figure 4a:

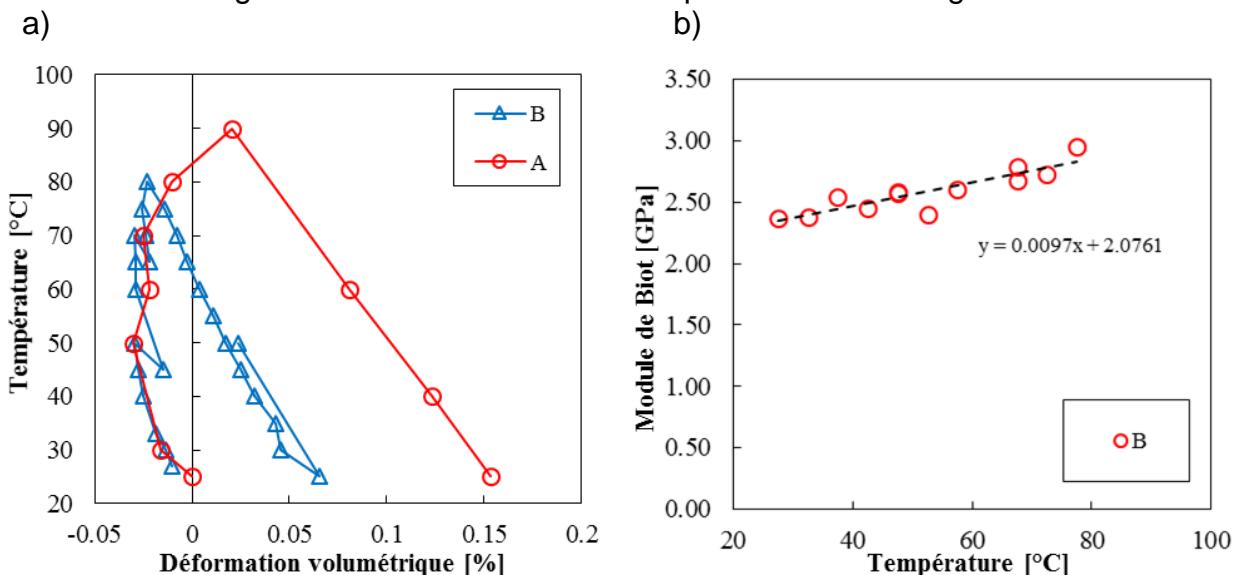


Figure 4. Déformations drainées des deux échantillons pendant le chauffage et le refroidissement (a), module de Biot mesuré sur l'échantillon B (b)

Notez que l'essai sur l'échantillon B a commencé avec une température initiale légèrement différente, donc la courbe de B a été décalée vers la gauche sur la Figure 4a pour permettre une meilleure comparabilité.

Pendant le chauffage, les deux échantillons présentaient des déformations thermiques irréversibles. Nous introduisons donc un coefficient de dilatation thermique drainé  $\alpha_d^*$ , qui décrit les déformations thermiques réversibles ( $\alpha_d$ ) et irréversibles ( $\alpha_d^{irr}$ ) et qui est déterminé à partir de la tangente sur la courbe température-déformation:

$$\alpha_d^* = \alpha_d + \alpha_d^{irr} \quad (4)$$

Les échantillons se sont d'abord dilatés avec la température jusqu'à 40 °C. À des températures plus élevées,  $\alpha_d^*$  diminue progressivement et devient négatif, ce qui signifie que le matériau se contracte avec le chauffage. Trois cycles de refroidissement-réchauffage effectués sur l'échantillon B entre 45-50 °C, 65-70 °C et 25-50 °C présentaient des déformations thermiques réversibles. Après réchauffage, le matériau semble revenir à sa courbe de chauffage vierge avec des déformations irréversibles. Nous obtenons un coefficient de dilatation thermique drainé à partir des phases de refroidissement et de réchauffage qui semble être constant avec la température, avec une valeur moyenne de  $\alpha_d = 0.27 \times 10^{-4} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$  pour l'échantillon A et  $\alpha_d = 0.17 \times 10^{-4} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$  pour l'échantillon B.

Ce comportement a déjà été observé par Monfared et al., (2011) sur l'argile à Opalinus et Belmokhtar et al., (2017a) sur l'argilite du COx et confirme leurs observations.

Au cours de la dissipation de la pression interstitielle après les étapes thermiques non drainées sur l'échantillon B, le module de Biot  $H$  pourrait être déterminé comme présenté sur la Figure 4b. Ce module montre une légère augmentation avec la température.

#### 4.3. Conditions non drainées

Le coefficient de dilatation thermique non drainé a été mesuré sur les deux échantillons, pendant la phase de chauffage comme coefficient tangent sur l'échantillon A et comme paramètres tangents et sécants sur l'échantillon B. Pendant le refroidissement, seuls les coefficients sécants ont pu être mesurés sur échantillon B (Figure 5).

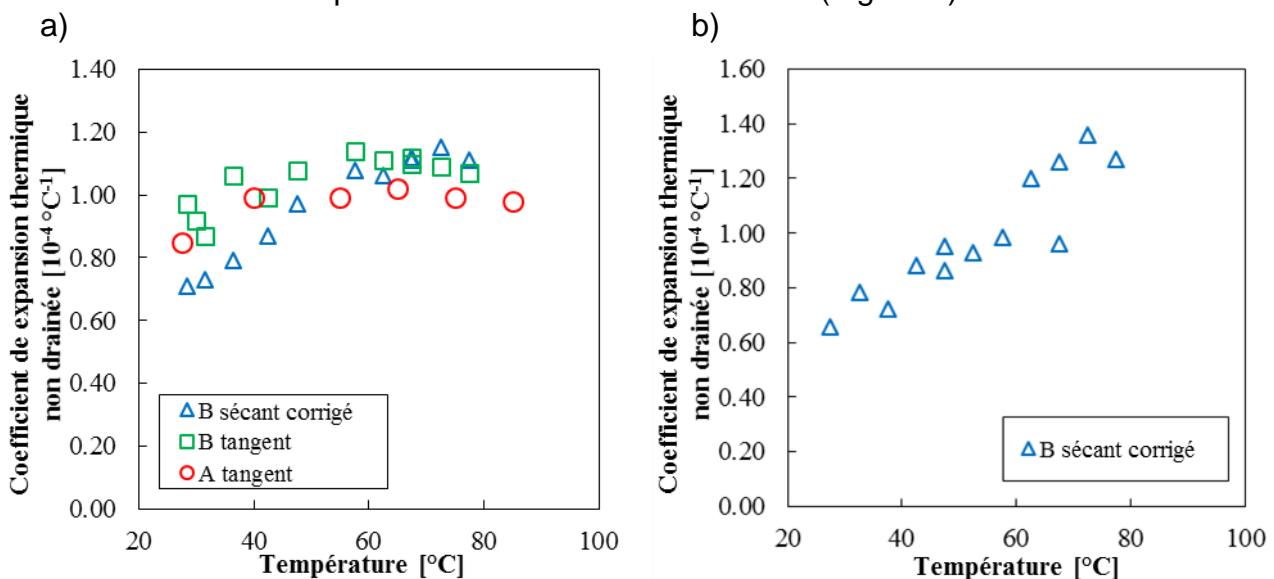


Figure 5. Résultats expérimentaux non drainés pendant le chauffage (a) et le refroidissement (b)

La compatibilité des propriétés mesurées et du couplage THM a été validée en utilisant la relation suivante:

$$\Lambda = (\alpha_u - \alpha_d) H \quad (5)$$

Cette formule nécessite les coefficients de dilatation thermique réversible drainés  $\alpha_d$ , qui ont été préalablement déterminés au cours des phases de refroidissement. Nous insérons également  $\alpha_u$  déterminé précédemment pour les deux échantillons en chauffage et en refroidissement.  $H$  est pris à partir de la Figure 4b telle que mesurée sur l'échantillon B, mais également utilisé pour l'échantillon A. La Figure 6 présente une comparaison des paramètres calculés et expérimentaux:

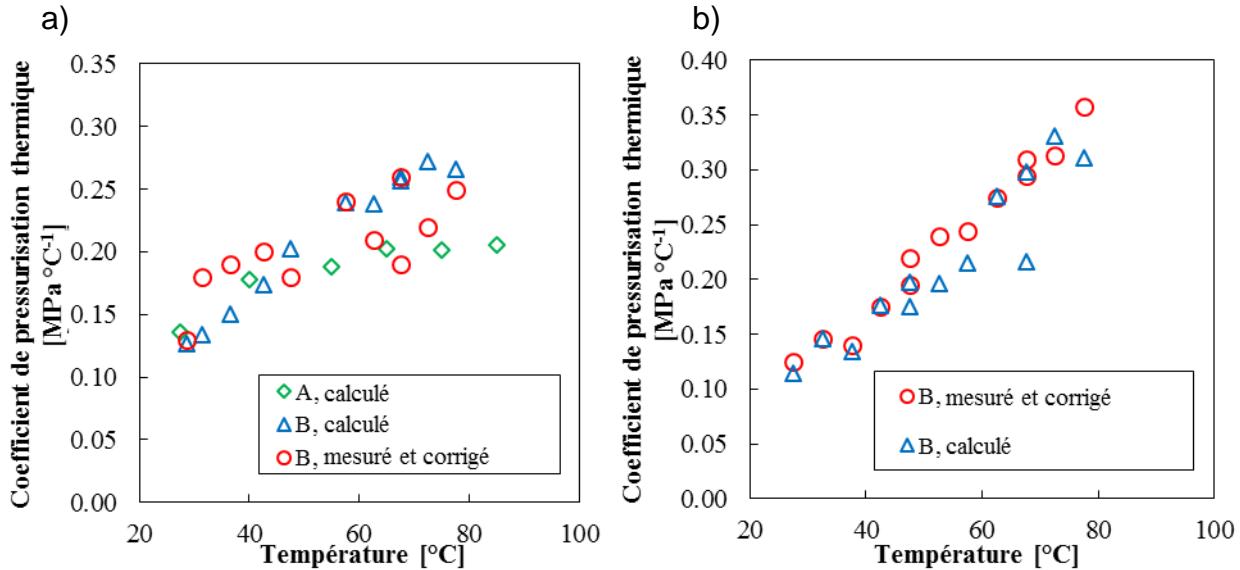


Figure 6.  $\Lambda$  mesuré et calculé pendant le chauffage (a) et le refroidissement (b)

Le chemin de refroidissement de l'échantillon B, où nous avons obtenu un ensemble complet de paramètres à chaque incrément de température, et où l'on peut supposer un comportement thermique purement élastique et réversible, a montré une bonne compatibilité entre  $\Lambda$  mesuré et calculé. Les résultats des chemins de chauffage montrent une certaine dispersion, qui peut être causée par un comportement de matériau non élastique ou par des microfuites influençant les mesures de  $\Lambda$  et  $H$ . Les valeurs théoriques et mesurées pour le chauffage de l'échantillon B montrent un accord acceptable, alors que les valeurs  $\Lambda$  de l'échantillon A sont en moyenne plus basses que celles de l'échantillon B. Cela peut être dû à la variabilité naturelle des échantillons ou au fait que des incrémentations thermiques plus élevées ont été appliquées à l'échantillon A.

## 5. Conclusions

Des protocoles pour des expériences thermiques en laboratoire, ainsi qu'un dispositif expérimental optimisé, ont permis de déterminer efficacement les propriétés thermiques de l'argilite du COx sur deux échantillons. Des contraintes thermiques drainées réversibles et irréversibles ont été détectées pendant le chauffage et le refroidissement. On a déterminé le coefficient de dilatation thermique non drainé en fonction de la température. On a calculé le coefficient de pressurisation thermique avec le module de Biot mesuré et le coefficient de dilatation thermique drainé mesuré. Ces résultats théoriques ont été comparés aux valeurs déterminées expérimentalement et montrent une bonne compatibilité. Le coefficient de pressurisation thermique obtenu montre une forte dépendance à la température et des valeurs différentes en chauffage et en refroidissement.

## 6. Références

- Andra (2005). Dossier 2005 Argile: Evaluation of the feasibility of a geological repository in an argillaceous formation, <http://www.andra.fr/international/download/andra-international-en/document/editions/266va.pdf>.
- Belmokhtar M., Delage P., Ghabezloo S., Conil N. (2017a). Thermal Volume Changes and Creep in the Callovo-Oxfordian Claystone, Rock Mech Rock Eng, vol. 50, pp. 2297–2309.
- Belmokhtar M., Delage P., Ghabezloo S., Tang A.-M., Menaceur H., Conil N. (2017b). Poroelasticity of the Callovo-Oxfordian Claystone, Rock Mech Rock Eng, vol. 50, pp. 871–889.
- Biot M.A., Willis D.G. (1957). The Elastic Coefficients of the Theory of Consolidation, J Appl Mech, vol. 24, pp. 594–601.
- Chiarelli A.S. (2000). Étude expérimentale et modélisation du comportement mécanique de l'argile de l'Est, Influence de la profondeur et de la teneur en eau, Université Lille I
- Escoffier S. (2002). Caractérisation expérimentale du comportement hydromécanique des argilites de Meuse Haute-Marne, Institut National Polytechnique de Lorraine
- Ghabezloo S., Sulem J. (2009). Stress dependent thermal pressurization of a fluid-saturated rock, Rock Mech Rock Eng, vol. 42, pp. 1–24.
- Ghabezloo S., Sulem J. (2010). Effect of the volume of the drainage system on the measurement of undrained thermo-poro-elastic parameters, Int J Rock Mech Min Sci, vol. 47, pp. 60–68.
- Ghabezloo S., Sulem J., Saint-Marc J. (2009). The effect of undrained heating on a fluid-saturated hardened cement paste, Cem Concr Res, vol. 39, pp. 54–64.
- Mohajerani M., Delage P., Sulem J., Monfared M., Tang A.-M., Gatmiri B. (2012). A laboratory investigation of thermally induced pore pressures in the Callovo-Oxfordian claystone, Int J Rock Mech Min Sci, vol. 52, pp. 112–121.
- Mohajerani M., Delage P., Sulem J., Monfared M., Tang A.-M., Gatmiri B. (2014). The thermal volume changes of the callovo-oxfordian claystone, Rock Mech Rock Eng, vol. 47, pp. 131–142.
- Monfared M., Sulem J., Delage P., Mohajerani M. (2011). A Laboratory Investigation on Thermal Properties of the Opalinus Claystone, Rock Mech Rock Eng, vol. 44, pp. 735–747.
- Spang B. (2002). Excel add-in for properties of water and steam in SI-units, <http://www.cheresources.com/iapwsif97.shtml>.
- Tang A.-M., Cui Y.-J., Barnel N. (2008). Thermo-mechanical behaviour of a compacted swelling clay, Géotechnique, vol. 58, pp. 45–54.
- Zhang F., Xie S.Y., Hu D.W., Shao J.F., Gatmiri B. (2012). Effect of water content and structural anisotropy on mechanical property of claystone, Appl Clay Sci, vol. 69, pp. 79–86.