

COMPORTEMENT HYDROMECHANIQUE DE PELLETS DE BENTONITE : CARACTERISATION AU LABORATOIRE ET SIMULATIONS DEM

SWELLING BEHAVIOUR OF PELLETS-BASED BENTONITE MATERIALS: GRAIN-LEVEL EXPERIMENTAL CHARACTERISATION AND DEM SIMULATIONS

Benjamin DARDE^{1,2}, Anh Minh TANG¹, Jean-Noël ROUX¹, Jean-Michel PEREIRA¹, Patrick DANGLA¹, Jean TALANDIER², Minh Ngoc VU²

¹ *Laboratoire Navier, UMR 8205 (Ecole des Ponts ParisTech – Ifsttar – CNRS), Champs-sur-Marne, France*

² *Andra, Direction R&D, Châtenay-Malabry, France*

RÉSUMÉ – Un mélange de pellets/poudre de bentonite compactée est envisagé comme matériau de scellement dans le cadre du stockage des déchets radioactifs. La pression de gonflement développée au début de l'humidification est étudiée par l'intermédiaire de simulations numériques discrètes. Les paramètres d'entrée des calculs sont issus d'une caractérisation du matériau en laboratoire.

ABSTRACT – A bentonite pellet/powder mixture is considered as sealing material in nuclear waste disposal. The swelling pressure developed during hydration from high suction values is investigated through discrete element method simulations. Simulations input parameters are obtained by grain-level experimental characterisation at laboratory scale.

1 Introduction

Dans le cadre du stockage géologique des déchets radioactifs, l'utilisation de matériaux à base de mélange de pellets et poudre de bentonite compactée est envisagée pour former les bouchons de scellement des galeries. La bentonite est caractérisée par une faible perméabilité, une bonne capacité de rétention des radionucléides et un potentiel de gonflement important lors de l'hydratation, permettant notamment de combler les vides technologiques et reconfiner la roche endommagée par l'excavation.

La présente étude se focalise sur le comportement hydromécanique de ces mélanges au cours de leur saturation. A l'issue de l'humidification, le mélange s'homogénéise et l'aspect final du matériau ne diffère pas de celui des blocs de bentonite compactée (van Geet et al., 2005 ; Hoffmann et al., 2007, Garcia-Sineriz et al., 2015). La pression de gonflement finale du matériau homogénéisé dépend alors de sa densité sèche (Karnland et al., 2008). En revanche, le comportement au début de l'humidification, avant l'homogénéisation, et notamment l'influence du caractère granulaire du matériau sur le développement de la pression de gonflement, est méconnu.

Des essais de pression de gonflement en laboratoire peuvent être réalisés sur ces matériaux mais leur durée importante, conséquence de la faible perméabilité du matériau, rend leur répétabilité et leur exploitation délicates en vue de développer des modèles prédictifs. Une méthode d'étude du comportement du matériau à succion élevée est proposée, basée sur la mécanique de contacts et les simulations numériques discrètes. Ces simulations peuvent être répétées un grand nombre de fois et permettent ainsi d'étudier l'influence de divers paramètres sur le comportement du matériau.

Dans un premier temps, le comportement d'un pellet est caractérisé en laboratoire au cours de l'humidification. Dans un second temps, un modèle de comportement est retenu pour décrire l'évolution des caractéristiques mécaniques d'un pellet au cours de

l'humidification. Enfin, le modèle est utilisé dans le cadre de simulations numériques discrètes afin de modéliser un essai de pression de gonflement en cellule isochore.

2 Matériau

Le matériau étudié est un mélange de pellets de bentonite MX80 et de concassé de pellets. Il sera désigné par la suite par « mélange pellets/poudre ».

2.1 Bentonite MX80

La bentonite MX80 est une bentonite sodique dont les principales caractéristiques sont présentées dans le Tableau 1.

Tableau 1 : Caractéristiques de la bentonite MX80

| Teneur en montmorillonite (%) | CEC (meq/100g) | Masse volumique des particules ρ_s (Mg/m ³) | Limite de plasticité (%) | Limite de liquidité (%) |
|-------------------------------|-----------------|--|--------------------------|-------------------------|
| 92 ^a | 76 ^b | 2,77 ^b | 53 ^b | 575 ^b |

a : Tang et al. (2008)

b : Saba et al. (2014)

2.2 Microstructure et cinétique d'hydratation des bentonites compactées

Les sols fins compactés du côté sec de l'optimum sont caractérisés par une microstructure dite à double porosité. Il convient alors de distinguer les micropores, correspondant aux pores intra-agrégats : espaces interfoliaires et entre les particules argileuses formant les agrégats ; et les macropores, correspondant aux pores inter-agrégats (Figure 1).

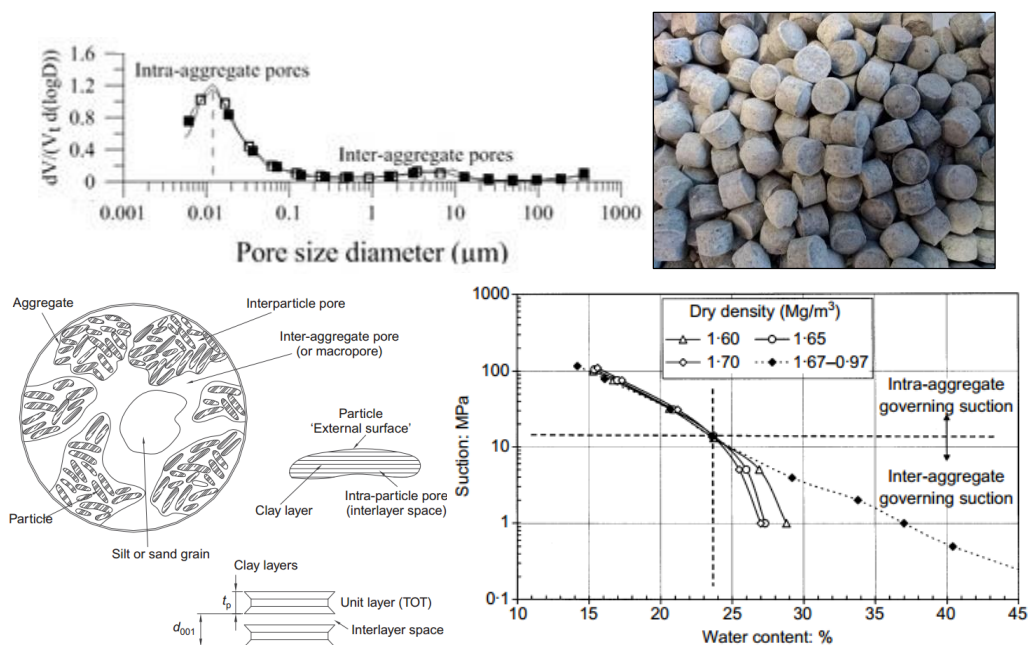


Figure 1 : Distribution de pore monomodale d'un pellet de bentonite compacté à une densité sèche de 2,12 Mg/m³ (Molinero-Guerra et al., 2017, en haut à gauche) ; Pellets de bentonite MX80 (en haut à droite) ; Schéma de la double structure d'un sol fin compacté (Jacinto et al., 2012, en bas à gauche) ; Domaines de rétention d'eau d'une bentonite compactée (Lloret et al., 2003, en bas à droite)

Il est communément admis que les micropores ne sont pas affectés par les processus de compactage, et sont donc indépendants de la masse volumique sèche. A l'inverse, le volume des macropores dépend de la masse volumique sèche. Pour des valeurs faibles de masse volumique sèche, la distribution des tailles des pores est ainsi bimodale. Pour des

valeurs élevées, le volume de macropores est négligeable et la distribution est monomodale (Figure 1). Au cours de l'humidification, l'eau est stockée dans les micropores par adsorption (domaine intra-agrégats), puis dans les macropores (domaine inter-agrégats) par capillarité (Figure 1). Les micropores sont saturés jusqu'à des valeurs élevées de succion, tandis que les macropores demeurent secs jusqu'à des valeurs faibles de succion.

2.3 Caractéristiques des pellets

Les pellets sont composés d'une partie cylindrique et de deux demi-sphères à chacune des extrémités (Figure 1). Leurs caractéristiques sont présentées dans le Tableau 2.

Tableau 2 : Principales caractéristiques des pellets

| Diamètre (mm) | Hauteur partie cylindrique (mm) | Hauteur totale (mm) | Rayon de courbure (mm) | Masse moyenne (g) | Masse volumique apparente (Mg/m ³) | Teneur en eau massique (%) | Masse volumique sèche (Mg/m ³) | Succion initiale (MPa) |
|---------------|---------------------------------|---------------------|------------------------|-------------------|--|----------------------------|--|------------------------|
| 7 | 5 | 7 | 6,5 | 0.461 | 2,15 | 12,5 | 1,90 | 89 |

3 Etude expérimentale du comportement hydromécanique des pellets de MX80

L'évolution des caractéristiques des pellets au cours de l'humidification a été étudiée en imposant différentes valeurs de succion aux échantillons. A chaque palier d'humidité relative, la déformation volumique, la déformabilité et la résistance des pellets sont mesurées. Les échantillons sont étudiés à hautes valeurs de succion : 89 MPa (état initial) à 9 MPa (valeur à partir de laquelle une réorganisation de la microstructure est supposée affecter le comportement du matériau, Saiyouri et al., 2004 ; Molinero-Guerra et al., 2017).

3.1 Hydratation par la méthode de la phase vapeur

Contrairement à la saturation par injection d'eau liquide, le contrôle de succion permet de caractériser l'évolution des caractéristiques du matériau au cours de l'humidification. La méthode de la phase vapeur (Tang et Cui, 2005 ; Delage et al., 1998) permet d'imposer des succions de l'ordre du MPa à plusieurs centaines de MPa. Les paliers de succions retenus sont : 82 MPa ; 59 MPa ; 57 MPa ; 40 MPa ; 38 MPa ; 25 MPa ; 13 MPa ; 9 MPa.

3.2 Mesure du gonflement

A l'issue de chaque palier de succion, les pellets sont photographiés et la déformation volumique est déterminée en mesurant les variations de rayon et de hauteur des pellets.

3.3 Essais d'écrasement

Les essais sont réalisés sur des pellets seuls. Un pellet est écrasé entre un piston et une plaque d'acier à une vitesse de 0,1 mm/min (Figure 2). Le déplacement et la force sont mesurés. Le comportement du pellet, pour ces valeurs élevées de succion, est considéré élastique linéaire isotrope. Le contact entre l'extrémité sphérique de l'échantillon et le dispositif expérimental est subponctuel.

La loi de Hertz (Johnson, 1985) est retenue pour déterminer le module d'Young du pellet (Figure 2) :

$$F_N = \frac{1}{3} \frac{E}{1 - \nu^2} (2r)^{1/2} \delta_N^{3/2} \quad (1)$$

Avec F_N la force normale au contact, E le module d'Young, ν le coefficient de Poisson, r le rayon de courbure de l'extrémité sphérique, δ_N la déflexion au contact.

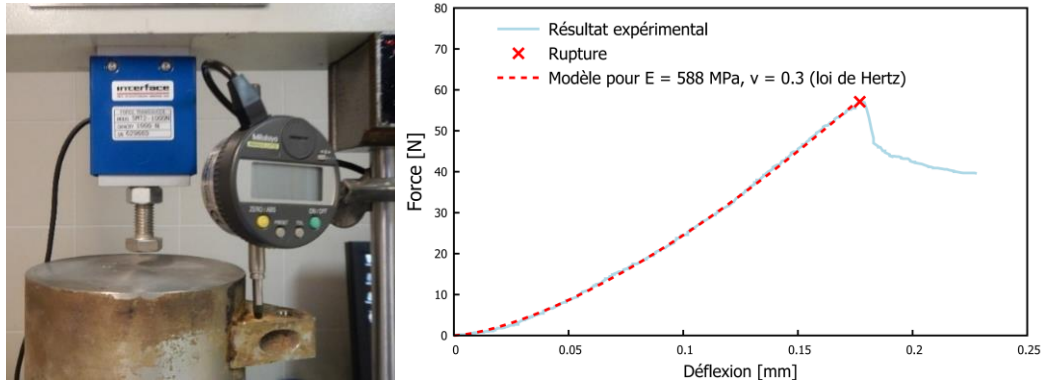


Figure 2 : Dispositif expérimental pour les essais d'écrasement (à gauche) et traitement des résultats d'essais avec la loi de Hertz (à droite).

3.4 Résultats expérimentaux

Les résultats obtenus pour la déformation volumique au cours de la diminution de succion sont présentés en Figure 3, et comparés avec ceux obtenus par Molinero-Guerra et al. (2017) pour un matériau similaire. Les valeurs sont normalisées pour que la succion initiale soit 82 MPa, le premier palier de succion commun aux deux études.

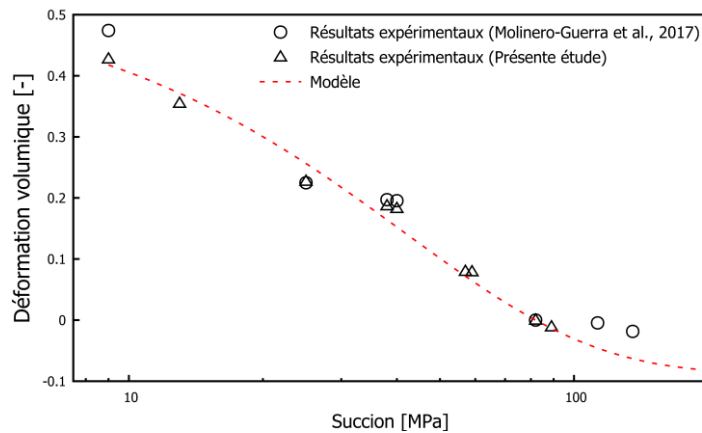


Figure 3 : Déformation volumique en fonction de la succion pour les pellets de MX80 ; avec pour succion initiale 82 MPa

Les variations de module et de résistance au cours de l'humidification sont synthétisées dans la Figure 4.

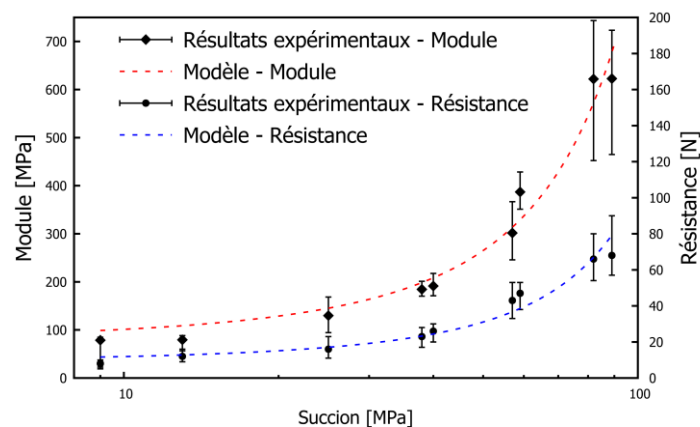


Figure 4 : Résistance et module en fonction de la succion pour les pellets de MX80

4 Modèle retenu pour décrire le comportement des pellets à succion élevée

Compte tenu de la haute densité des pellets, il est considéré que le comportement de ces derniers est régi par leur microstructure, considérée saturée. En conditions de gonflement libre, la succion est l'unique sollicitation à laquelle est soumis le matériau.

Il est ainsi choisi d'exprimer la contrainte moyenne effective p' comme étant égale à la succion s (Gens et Alonso, 1992 ; Alonso et al., 2010 ; Masin et Khalili, 2016).

Les résultats expérimentaux (Figure 4) montrent une décroissance exponentielle du module d'Young au cours de l'humidification. Une relation exponentielle est retenue pour décrire son évolution en fonction de la succion (Alonso et al., 1999) :

$$K(s) = \frac{1}{\beta_m} \exp(\alpha_m s) \quad (2)$$

Avec K le module d'élasticité isostatique ($K = E/3(1-2\nu)$), α_m et β_m des paramètres du modèle, homogènes à des Pa^{-1} . Par intégration, il vient :

$$\varepsilon_v(s) = \frac{\beta_m}{\alpha_m} [\exp(-\alpha_m s_0) - \exp(-\alpha_m s)] \quad (3)$$

Où ε_v est la déformation volumique et s_0 la succion initiale (MPa).

Une unique valeur de α_m et β_m a permis de décrire de manière satisfaisante les variations de module et la déformation volumique au cours de l'humidification ($\alpha_m = 0,024 \text{ MPa}^{-1}$; $\beta_m = 0,015 \text{ MPa}^{-1}$), représentée par les courbes rouges sur les Figures 3 et 5.

Une relation exponentielle est retenue pour décrire l'évolution de la résistance du pellet au cours de l'humidification (Figure 4) :

$$F_{N \max}(s) = b \exp(a s) \quad (4)$$

Où a et b sont des paramètres déterminés à partir des résultats expérimentaux ($a = 0,024 \text{ MPa}^{-1}$; $b = 9,35 \text{ N}$).

5 Simulations numériques discrètes

Le modèle de comportement du pellet est implémenté dans un code de calcul aux éléments discrets (DEM) afin d'étudier le comportement du matériau *au début* de l'hydratation, lorsqu'il est à l'état d'assemblage granulaire. Un essai d'humidification du matériau en cellule isochore, actuellement en cours, est modélisé. La comparaison des résultats permettra de valider le modèle et d'ajuster si nécessaire les hypothèses formulées.

5.1 Hypothèses retenues

Les pellets sont décrits par leur microstructure et la poudre, occupant les pores inter-pellets, est supposée gonfler librement dans la gamme de succion considérée. La pression de gonflement est ainsi contrôlée par les forces de contact entre les pellets et la paroi. Seuls les pellets sont modélisés dans les simulations, et sont représentés par des sphères (Figure 5). Les interactions aux contacts sont élastiques-parfaitement plastiques et définies par la loi de Hertz, le frottement de Coulomb (Roux et Chevoir, 2005 ; Than et al., 2016) et la limite d'élasticité.

Le nombre de pellets dans la simulation ($N = 210$) correspond à une densité sèche du mélange identique à celle de l'essai en cours au laboratoire ($1,50 \text{ Mg/m}^3$). Les dimensions de la cellule et du capteur de pression sont identiques à celles de l'essai :

Rayon de la cellule = hauteur de la cellule = diamètre du capteur de pression = 30 mm.

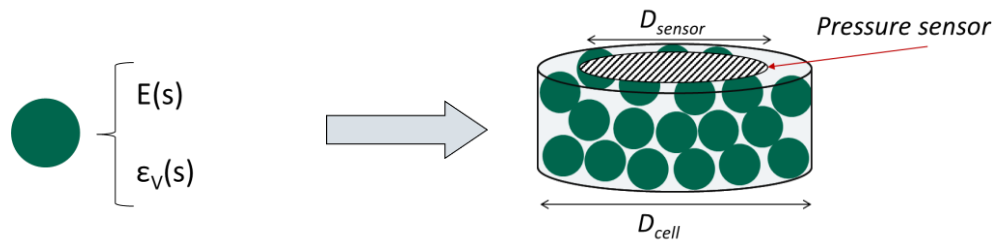


Figure 5 : Echantillon numérique simulé en DEM

5.2 Préparation et gonflement des échantillons numériques

Les simulations sont réalisées en deux étapes : la première consiste à placer le nombre de grains souhaité dans un volume cylindrique, la seconde consiste à augmenter le rayon de chaque sphère de manière incrémentale et calculer l'évolution de la pression de gonflement.

Les échantillons numériques sont préparés de manière à se rapprocher de la méthode de préparation expérimentale : les sphères sont placées une à une à la cote la plus faible possible. Lorsque toutes les sphères sont placées, le cylindre est refermé, comprimant légèrement, lorsqu'il en existe, les sphères dont la cote initiale est supérieure à la hauteur de la cellule.

L'humidification est modélisée en imposant un gonflement aux sphères. La succion est calculée à partir de l'équation (3). Le module des sphères est calculé à partir de l'équation (2). La limite d'élasticité des contacts est définie par l'équation (4). Le coefficient de Poisson est pris égal à 0,3. Le coefficient de frottement est égal à 0,3.

La pression de gonflement apparente correspond à la somme des forces normales exercées sur la surface correspondant au capteur de pression. Les résultats sont exprimés comme la variation de pression de gonflement en fonction de la succion.

5.3 Résultats des simulations DEM

5.3.1. Evolution de la pression de gonflement

La pression de gonflement calculée par simulations DEM, pour des succions élevées (≥ 9 MPa), évolue selon trois phases (Figure 6).

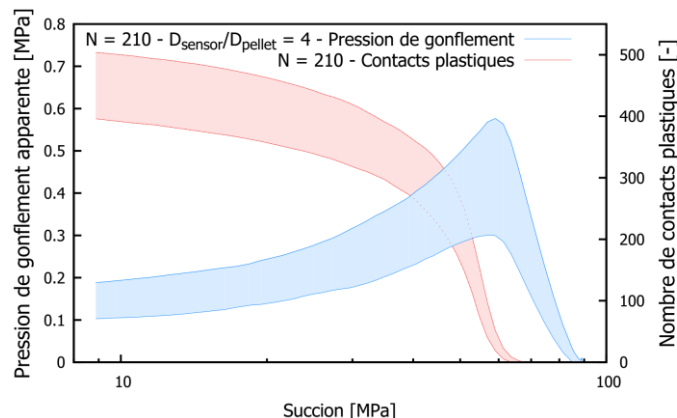


Figure 6 : Résultats de 100 simulations DEM. Intervalles de confiance à 95 %.

Dans un premier temps, les pellets gonflent et exercent une pression sur les parois de la cellule. Cette phase est ainsi caractérisée par une augmentation de la pression de gonflement. Les réactions aux contacts atteignent ensuite progressivement la limite d'élasticité. Cette deuxième phase est caractérisée par un palier de pression de gonflement. Dans une troisième phase, la plupart des contacts ont atteint la limite d'élasticité. Ainsi, la

force aux contacts n'augmente plus et la réponse du matériau est contrôlée par le nombre de contacts avec le capteur et la diminution de la limite d'élasticité (Figure 4).

L'existence de ces trois phases, dans les calculs réalisés, est dépendante de la validité des hypothèses formulées, notamment la caractérisation des pellets par leur microstructure jusqu'à 9 MPa de succion, cette dernière étant considérée saturée dès 89 MPa de succion ; ainsi que le choix des paramètres α_m , β_m , a et b , obtenus expérimentalement en condition non confinée.

5.3.2. Influence de la densité sèche

L'influence d'un vide technologique sur le développement de la pression de gonflement est étudiée en réalisant des simulations comprenant un nombre plus faible de pellets. La valeur de 10 % de vide, correspondant à une densité sèche au sein du VER de 1,35 Mg/m³ ($N = 190$), est retenue. Les résultats montrent un développement plus tardif et de plus faible amplitude de la pression de gonflement et une distinction moins nette des phases 2 et 3 décrites au 5.3.1 (Figure 7). Néanmoins, lorsque les forces aux contacts atteignent la limite d'élasticité, la différence entre les deux types de simulations est réduite, le comportement étant en partie régi par la limite d'élasticité (équation (4)) et donc par le nombre de pellets en contact avec la paroi supérieure, plutôt que par le nombre total de pellets dans la cellule.

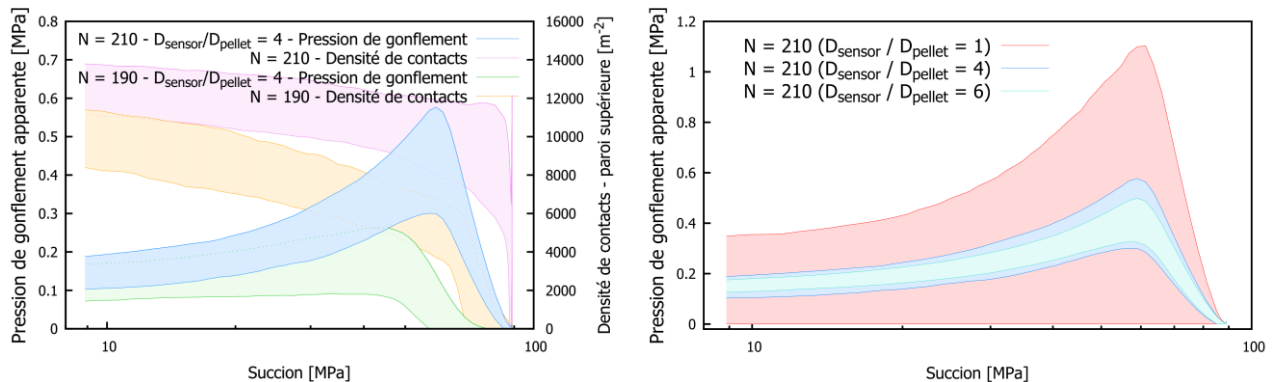


Figure 7 : Influence de la densité sèche (à gauche) et du diamètre du capteur (à droite) sur la pression de gonflement mesurée en DEM. Intervalles de confiance à 95 % pour 100 simulations.

5.3.3. Influence du diamètre du capteur

Pour une même simulation, l'influence du diamètre du capteur est étudiée en tenant compte d'une surface différente pour le calcul de la pression de gonflement. Les résultats mettent en évidence que ce paramètre est une source notable d'incertitude, qu'il conviendra de considérer lors du traitement de résultats expérimentaux (Figure 7).

6 Conclusions et perspectives

La caractérisation du comportement hydromécanique des pellets de bentonite au laboratoire a permis de déterminer les paramètres nécessaires à la réalisation de simulations DEM. L'évolution de la pression de gonflement ainsi calculée lors des premiers stades d'hydratation d'un assemblage de pellets dépend notamment de la compacité du mélange, l'évolution des caractéristiques mécaniques des pellets au cours de l'hydratation, ainsi que la taille de la surface retenue pour calculer la pression de gonflement apparente.

Ces résultats, qui devront être confrontés aux résultats expérimentaux en cours au laboratoire, tendent à montrer que, si la pression de gonflement finale de ces matériaux dépend principalement de leur densité sèche, son développement est affecté par le caractère granulaire du mélange. Par ailleurs, la variabilité associée à la taille du capteur

est une source d'incertitude qui ne doit pas être considérée négligeable lors de la réalisation -et du traitement des résultats- d'essais d'humidification sur ces matériaux.

7 Références bibliographiques

- Alonso, E. E., Pereira, J.-M., Vaunat, J., & Olivella, S. (2010). A microstructurally based effective stress for unsaturated soils. *Géotechnique*, 60(12), 913–925.
- Alonso, E. E., Vaunat, J., & Gens, A. (1999). Modelling the mechanical behaviour of expansive clays. *Engineering Geology*, 54(1–2), 173–183.
- Delage, P., Howat, M. D., & Cui, Y. J. (1998). The relationship between suction and swelling properties in a heavily compacted unsaturated clay. *Engineering Geology*, 50(1–2), 31–48.
- Garcia-Sineriz, J. L., Villar, M. V., Rey, M., & Palacios, B. (2015). Engineered barrier of bentonite pellets and compacted blocks: State after reaching saturation. *Engineering Geology*, 192, 33–45.
- Gens, A., & Alonso, E. E. (1992). A framework for the behaviour of unsaturated expansive clays. *Canadian Geotechnical Journal*, 29, 1013–1032.
- Hoffmann, C., Alonso, E. E., & Romero, E. (2007). Hydro-mechanical behaviour of bentonite pellet mixtures. *Physics and Chemistry of the Earth*, 32(8–14), 832–849.
- Jacinto, a. C. C., Villar, M. V. V., Ledesma, a., & Jacinto, a. C. C. (2012). Influence of water density on the water-retention curve of expansive clays. *Géotechnique*, 62(8), 657–667.
- Johnson, K. L. (1985). *Contact Mechanics*. Cambridge, UK: Cambridge University Press.
- Karnland, O., Nilsson, U., Weber, H., & Wersin, P. (2008). Sealing ability of Wyoming bentonite pellets foreseen as buffer material - Laboratory results. *Physics and Chemistry of the Earth*, 33(SUPPL. 1), 472–475.
- Lloret, A., Villar, M. V., Sanchez, M., Gens, A., Pintado, X., & Alonso, E. (2003). Mechanical behaviour of heavily compacted bentonite under high suction changes. *Geotechnique*, 53(1), 27–40.
- Masin, D., & Khalili, N. (2016). Swelling phenomena and effective stress in compacted expansive clays. *Canadian Geotechnical Journal*, 53, 134–147.
- Molinero Guerra, A., Mokni, N., Cui, Y., Tang, A. M., Delage, P., Aïmedieu, P., & Bornert, M. (2017). In-depth characterization of the hydro-mechanical behaviour of a mixture composed of pellets / powder MX80 bentonite. *Proceedings of Pan-Am UNSAT 2017 (Dallas, US)*, 1–15.
- Roux, J.-N., & Chevoir, F. (2005). Simulation numérique discrète et comportement mécanique des matériaux granulaires. *Bulletin des Laboratoires des Ponts et Chaussées*, 254, 109–138.
- Saba, S., Cui, Y., Tang, A. M., & Barnichon, J. (2014). Investigation of the swelling behaviour of compacted bentonite-sand mixtures by mock-up tests. *Canadian Geotechnical Journal*, 51(April), 1399–1412.
- Saiyouri, N., Tessier, D., & Hicher, P. Y. (2004). Experimental study of swelling in unsaturated compacted clays. *Clay Minerals*, 39(4), 469–479.
- Tang, A. M., & Cui, Y.-J. (2005). Controlling suction by the vapour equilibrium technique at different temperatures and its application in determining the water retention properties of MX80 clay. *Canadian Geotechnical Journal*, 42(1), 287–296.
- Tang, A. M., Cui, Y. J., & LE, T. T. (2008). A study on the thermal conductivity of compacted bentonites. *Applied Clay Science*, 41, 181–189.
- Than, V. D., Khamseh, S., Tang, A. M., Pereira, J.-M., Chevoir, F., & Roux, J.-N. (2016). Basic Mechanical Properties of Wet Granular Materials: A DEM Study. *Journal of Engineering Mechanics*, C4016001.
- Van Geet, M., Volckaert, G., & Roels, S. (2005). The use of microfocus X-ray computed tomography in characterising the hydration of a clay pellet/powder mixture. *Applied Clay Science*, 29(2), 73–87.