

# VERS UN NOUVEAU MATERIAU CO<sub>x</sub>/MX80 EN PELLETS : ETUDE DU MELANGE ET OPTIMISATION DU FUSEAU GRANULAIRE

## TOWARDS A NEW CO<sub>x</sub>/MX80 MATERIAL IN PELLETS: STUDY OF THE MIXTURE AND OPTIMIZATION OF GRANULAR MIXTURE

Danai TYRI<sup>1,2,3</sup>, Irini DJERAN-MAIGRE<sup>2</sup>, Jean-Claude ROBINET<sup>3</sup>, François NADER<sup>2</sup> et Jad ZGHONDI<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Andra, Meuse/Haute-Marne Underground Research Laboratory, F-52290 Bure, France

<sup>2</sup> Univ Lyon, INSA Lyon, GEOMAS, F-69621 Villeurbanne, France

<sup>3</sup> Euro-Géomat Consulting, F-45100 Orléans, France

**RÉSUMÉ** – Le matériau en pellets constitué d'un mélange de CO<sub>x</sub> argilite et de MX80 bentonite est une des options possibles pour le remblai du stockage des déchets radioactifs. Des simulations numériques sont effectuées pour optimiser la granulométrie en maximisant la densité de la mise en place. Un travail expérimental est mené pour évaluer la réponse hydromécanique des différents mélanges CO<sub>x</sub>/MX80.

**ABSTRACT** – Pelletized material made of CO<sub>x</sub> argillite/MX80 bentonite mixture is one of the possible options for the backfill of radioactive waste disposal. Numerical simulations are conducted to optimize the granulometry maximizing the emplaced density of a granular material. . An experimental work is conducted to evaluate the hydromechanical response of various CO<sub>x</sub>/MX80 mixtures.

### 1. Introduction

En France, l'Andra est en charge du projet «Cigéo» de stockage en site géologique profond des déchets radioactifs à vie longue. Après la mise en place des colis de déchets dans les alvéoles de stockage, la fermeture du site sera réalisée. Cette fermeture nécessitera le remblaiement des galeries avec un matériau capable de reprendre les vides technologiques inévitables (vides dans le matériau et vides entre le matériau de remplissage et la clef de la galerie) (Andra, 2013).

Dans ce cadre, il est envisagé de conférer au remblai un potentiel de gonflement (ce qui induit une densité à la mise en place assez élevée). Le gonflement du remblai permettra de limiter la convergence des galeries et l'extension de la zone fracturée résultante autour des ouvrages. Pour atteindre cet objectif, l'Andra étudie différentes solutions à base d'argilite excavée remaniée, dopée avec de la bentonite. L'intérêt est double : réutiliser une partie des matériaux issus du creusement des galeries et limiter les perturbations que pourraient engendrer l'introduction de matériaux exogènes. De plus, la bentonite est utilisée dans ce contexte afin de provoquer le gonflement. La solution présentée dans cet article est l'utilisation pour le remblaiement des galeries de pellets ayant une densité de l'ordre de 2 Mg/m<sup>3</sup>, de forme quasi-sphérique et réalisées à partir d'un mélange homogène d'argilite et de bentonite. Les enjeux d'étude sont multiples, technologiques et scientifiques. Il s'agit notamment d'optimiser le fuseau granulaire pour obtenir un état aussi dense que possible pour atteindre le gonflement souhaité, de définir le pourcentage des matériaux à utiliser, les conditions de compactage de sorte à produire par pastillage les pellets de différents diamètres et de caractériser les propriétés hydromécaniques des mélanges.

En premier lieu, l'étude a porté sur la définition d'un fuseau granulaire minimisant les vides initiaux et augmentant ainsi la densité du mélange. Des modélisations numériques

utilisant la méthode des éléments discrets (DEM) ont permis de calculer cette granulométrie optimale (tailles et pourcentages des sphères).

En second lieu, des essais expérimentaux ont été réalisés sur le pourcentage de bentonite à incorporer à l'argillite afin d'étudier le comportement hydromécanique des mélanges. A partir de cette étude, une application aux remblaiements des galeries de 8 m de diamètre a été effectuée pour évaluer leurs capacités de scellement.

## 2. Granulométrie optimale d'un fuseau granulaire à l'aide d'une étude numérique

La granulométrie optimale associe la compacité d'un mélange de pellets dans les conditions de la mise en place à sa densité maximale. Dans ce contexte, des simulations numériques examinent le dépôt d'un échantillon de sphères, de différents diamètres donnés, dans une cellule cubique, sous l'effet de la gravité, afin d'optimiser les pourcentages correspondant aux différentes tailles des sphères, permettant d'atteindre ainsi la granulométrie cible optimale.

### 2.1. Modèle numérique

L'outil numérique utilisé est le logiciel libre LMG<sup>90</sup> d'éléments discrets qui se base sur la méthode NSCD (Non-Smooth Contact Dynamics) adaptée aux collections de corps rigides et/ou déformables (Jean 1999). Les forces de contact sont décrites par la loi de Signorini, qui identifie un système binaire unique candidat/antagoniste (Nader et al. 2019). Il s'agit d'une loi de contact unilatéral non régulière qui ne permet pas l'interpénétration entre corps. La loi de frottement de Coulomb s'applique en cas de contact sec sans cohésion entre les particules; il s'agit d'une loi à seuil.

Une granulométrie prédéfinie ( $d_i$ , % $d_i$  volumiques) est générée et déposée par une hauteur fixée ( $h$ ) dans un conteneur rectangulaire de dimensions données ( $\lambda_x = \lambda_y = \lambda_z = 10d_{max}$ ). Initialement, l'échantillon est généré avec une densité faible à l'intérieur des cinq parois de la boîte. La 6<sup>ème</sup> paroi est en contact avec la sphère qui se trouve à position la plus haute, ce qui permet de déterminer la hauteur de l'échantillon pendant le dépôt. Les particules se réarrangent sous l'effet de la gravité. Lorsque l'énergie cinétique devient égale à zéro, le réarrangement des particules est terminé. Pour les simulations, un coefficient de frottement faible a été choisi ( $\mu=0.1$ ) et par défaut, la hauteur de dépôt a été fixée à zéro. À la fin du dépôt, et ayant extrait le volume final, le volume des sphères solides est recalculé de manière à réduire les effets des bords et d'échelle, essayant de s'approcher au mieux des conditions qui règnent in situ dans les galeries (Figure 1).

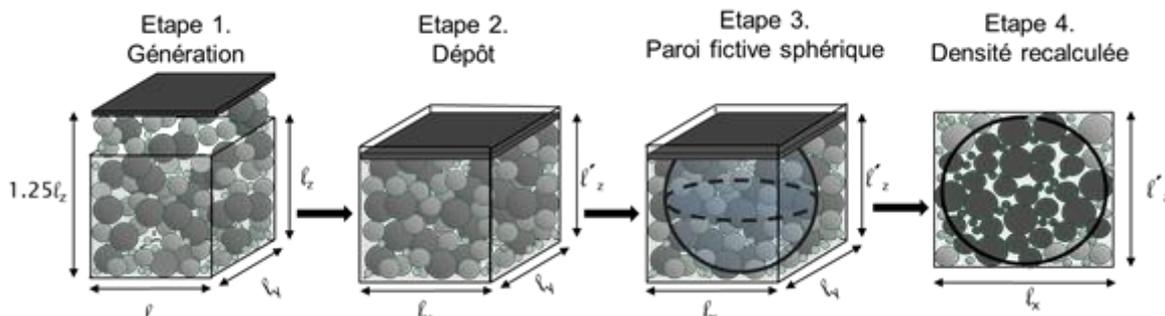


Figure 1. Simulations numériques : Conditions de différentes étapes.

### 2.2. Densité de la mise en place sur des échantillons trimodaux

Plusieurs pourcentages de trois diamètres  $d_{max}$ ,  $d_{med}$  et  $d_{min}$  ont été testés, permettant d'évaluer l'influence du rapport de taille ( $\alpha_i = d_i/d_{max}$ ). Au total, 17 différents pourcentages des diamètres ont été examinés pour chaque échantillon trimodal. Les détails des résultats obtenus pour des échantillons les plus denses sont résumés dans le Tableau 1.

Des densités maximales supérieures à 1,40 Mg/m<sup>3</sup> sont constatées. Pour des échantillons 20/10/5 mm, 16/10/4 mm and 12/4/3 mm, une très faible variation de la densité est observée, qui peut être expliquée par la même valeur du rapport de taille de d<sub>min</sub> (α<sub>min</sub>=0,25). Généralement, plus le rapport de taille est faible, plus l'assemblage obtenu est dense (Yu et al. 1992).

Tableau 1. Résultats de la DEM donnant l'état le plus dense pour chaque échantillon

d <sub>max</sub> /d <sub>med</sub> /d <sub>min</sub> (mm)	α <sub>max</sub> /α <sub>med</sub> /α <sub>min</sub>	%d <sub>max</sub> /%d <sub>med</sub> /%d <sub>min</sub>	Densité sèche maximale calculée (Mg/m <sup>3</sup> )
20 / 10 / 5	1.0 / 0.5 / 0.25	70 / 10 / 20	1.45
16 / 10 / 4	1.0 / 0.6 / 0.25	60 / 10 / 30	1.44
12 / 7 / 4	1.0 / 0.6 / 0.33	60 / 5 / 35	1.40
12 / 4 / 3	1.0 / 0.3 / 0.25	70 / 10 / 20	1.45

Parmi les meilleures (les plus élevées) densités calculées, celles qui ont été choisies sont celles qui exhibent des tailles de grain plus compatibles avec la pelletisation et avec les moyens techniques disponibles de réalisations de pellets. Ainsi, la configuration trimodale de diamètres 16 mm, 10 mm et 4 mm en proportions volumiques de 60%, 10% et 30% respectivement, a été choisie comme la granulométrie optimale.

Pour augmenter la densité de la mise en place, il est nécessaire de diminuer les vides inter-pellets, ce qui est possible en augmentant la hauteur de dépôt (figure 2). L'augmentation de la hauteur de chute augmente l'énergie cinétique des pellets ce qui permet de mieux les réarranger (Zhang et al. 2001). Les résultats montrent qu'une densité de l'ordre de 1,45-1,60 Mg/m<sup>3</sup> pourrait être obtenue en variant la hauteur de dépôt entre 0 à 1 m respectivement. Cette option a été mise en œuvre dans une maquette à grande échelle (7,6 m de diamètre et 35,5 m de longueur de) dans le cadre du projet FSS (Noiret et al. 2016). Une solution alternative pourrait être l'ajout d'un matériau de plus petit diamètre (sable ou concassé de pellets).

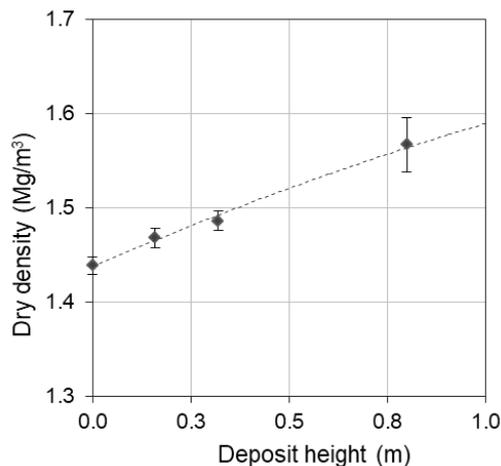


Figure 2. Densité calculée numériquement en fonction de la hauteur de dépôt.

### 3. Etude expérimentale sur les mélanges COx/MX80

L'argilite du Callovo-Oxfordien (COx) remaniée est un matériau à très faible capacité de gonflement lorsque celui-ci est compacté à l'optimum Proctor ou Proctor modifié. Afin d'accroître sa capacité de gonflement, le dopage par de la bentonite est nécessaire. Le remblai composé par le mélange COx/MX80 est mis en place dans un état partiellement saturé. La resaturation se fait très progressivement, l'eau provenant du milieu géologique environnant dont les perméabilités à l'eau sont très faibles. La pression interstitielle

variera ainsi d'une valeur négative à nulle. Les déformations résultantes vont produire un gonflement induit par le relâchement des contraintes capillaires et un gonflement interfoliaire. Dans cette étude, différents mélanges d'argilite (COx) excavée et broyée et de bentonite de type MX80 en poudre ont été examinés ( $\leq 30\%$ MX80 en masse) pour investiguer le comportement hydromécanique du matériau formant les pellets.

### 3.1. Matériaux étudiés

Des mélanges en poudre composés de COx et de MX80 ont été étudiés. Les caractéristiques physiques et chimiques des matériaux sont présentées dans le tableau 2. Le tableau 3 consigne la composition de l'eau d'infiltration qui est l'eau de site.

Tableau 2. Paramètres physiques et chimiques des matériaux étudiés

Matériau	$d_{\max}$ (mm)	$w_{\text{initial}}$ (%)	$w_P$ (%)	$w_L$ (%)	VBS (g/100g)	IG ( $\text{cm}^3/2\text{g}$ )
COx	2	6.2	21	47	3.3	3.6
MX80		12.5	57	465	25.0	30.0

$w_{\text{initial}}$  : teneur en eau à la réception,  $w_P$  : limite de plasticité,  $w_L$  : limite de liquidité, VBS : valeur de bleu de méthylène, IG : indice de gonflement

Tableau 3. Composition de l'eau de site utilisée

Concentration ionique (mmol/l)							pH (-)	CE ( $\mu\text{S}/\text{cm}$ )
$\text{Na}^+$	$\text{Cl}^-$	$\text{K}^+$	$\text{HCO}_3^-$	$\text{Ca}^{2+}$	$\text{SO}_4^{2-}$	$\text{Mg}^{2+}$		
44.8	34.9	0.5	1.5	4.2	12.7	4.1	7.9	5470

CE : conductivité électrique

### 3.2. Méthodes d'essai

#### 3.2.1. Compactage du matériau

Le compactage des matériaux a été étudié suivant deux techniques :

- l'essai Proctor standard, qui identifie la teneur en eau afin d'obtenir la densité sèche maximale, pour une énergie fixée. L'objectif était la détermination de la teneur en eau optimale pour la fabrication des pellets. L'eau utilisée était l'eau de site.
- le chemin œdométrique avec une vitesse de chargement de 0,4 mm/min sur des échantillons de diamètre de 40 mm. Les teneurs en eau sont respectivement de 6,2% pour le COx et 12,5% pour la MX80, correspondant à leur teneur en eau initiale. La compressibilité des matériaux a été étudiée sous conditions non-hydratées jusqu'à une masse volumique de  $2 \text{ Mg}/\text{m}^3$  (représentant la densité de chaque pellet).

#### 3.2.2. Capacité de gonflement

La densité du matériau gouverne le potentiel et la pression de gonflement pour les argiles gonflantes (Saba et al. 2014; Villar and Lloret 2008). Il a été constaté que la forme des matériaux (pellets ou poudre) n'affecte pas le gonflement (Imbert and Villar 2006; Karnland et al. 2008). Par conséquent, une étude sur des matériaux en poudre à une densité équivalente à celle attendue par un assemblage des pellets a été réalisée. Dans cette étude, le potentiel de gonflement a été déterminée en utilisant la méthode d'hydratation sous une contrainte verticale constante (Sridharan et Sivapullaiah 1986; Feng et Fredlund 1998). Des échantillons cylindriques de diamètre  $d=40$  mm sont compactés à la densité cible. L'infiltration avec de l'eau de site (pression d'injection 4 kPa) se fait sous deux contraintes mécaniques: une contrainte de 6 kPa et une de 100 kPa. Durant cette phase de saturation l'échantillon est libre de se déformer axialement et ces

déformations volumiques (gonflement ou tassement) sont mesurées par un comparateur de déplacement.

### 3.3. Analyse des résultats des essais en laboratoire jour

Les résultats des essais de compactage sont présentés sur la Figure 3. Tout d'abord, sur les essais Proctor (Figure 3(a)), l'augmentation de la teneur en MX80 entraîne une diminution de la densité à l'optimum Proctor. Une densité maximale est obtenue entre 1,50 et 1,65 Mg/m<sup>3</sup> pour une teneur en eau entre 18% et 25% pour des mélanges contenant 10% à 30%MX80.

Les essais de compaction dans la cellule œdométrique sont réalisés sur les mélanges COx/MX80. Sur la figure 3(b), l'axe des ordonnées donne les valeurs des densités qui augmentent en fonction de la contrainte appliquée. Ces essais montrent que l'ajout de MX80 au COx diminue la densité initiale (Figure 3(b)). En revanche, la compressibilité n'est pas affectée par la présence de la MX80. Il en résulte néanmoins une augmentation des contraintes de compactage pour obtenir la densité souhaitée (2,0 Mg/m<sup>3</sup>) quand le matériau est plus riche en MX80, passant de 20 à 30 MPa respectivement.

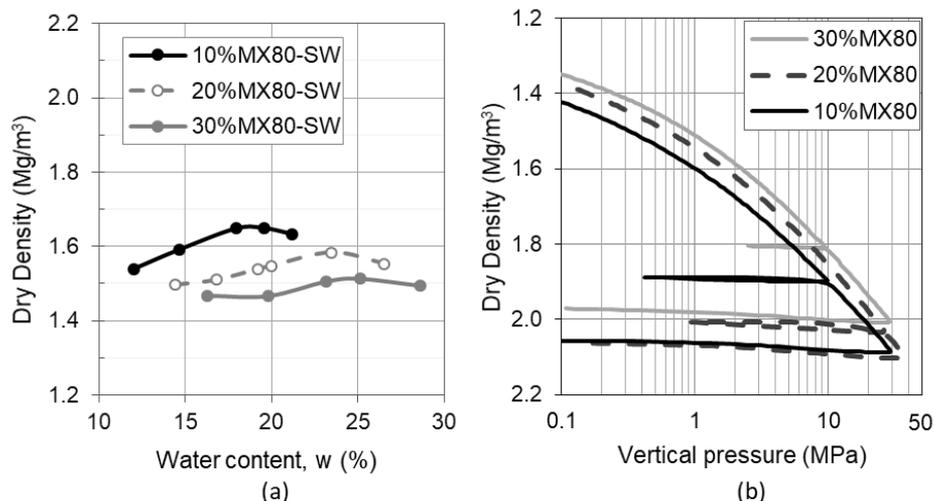


Figure 3. Résultats des tests de compactage sur les échantillons de COx / MX80:  
(a) essais Proctor standard utilisant de l'eau de site et (b) essais de compactage statique sur le matériau à l'état de réception.

Les déformations de gonflement finales obtenues dans les essais d'hydratation sous contrainte constante sont présentées sur la Figure 4. Les densités choisies de 1,45 et de 1,60 Mg/m<sup>3</sup> correspondent aux densités attendues pour le remblai avec des matériaux sous forme de pellets. Selon des études précédentes (Villar and Lloret 2008), une relation logarithmique lie le gonflement à la contrainte appliquée. Les potentiels de gonflement augmentent avec le pourcentage de bentonite et l'accroissement de la densité. Les valeurs négatives indiquent des tassements du matériau COx/MX80 dans les phases de saturation sous une contrainte de 100 kPa.

## 4. Application aux remblaiements des galeries

Après la mise en place des colis dans les alvéoles, les galeries d'accès et de liaison de grands diamètres (8 à 10 mètres) seront remblayées pour limiter le taux de vide dans le stockage. Le revêtement de galerie en béton conduit à considérer que la resaturation du matériau de remblai se fait à volume constant. Dans cette étude, on examinera uniquement la capacité de sceller les galeries par le gonflement des pellets lors de leur saturation. Les densités des remblais à saturation sont calculées à l'aide de l'indice des

vides et des poids volumiques, et sont égales à  $1,90 \text{ Mg/m}^3$  pour une densité initiale de  $1,45 \text{ Mg/m}^3$  et à  $2,00 \text{ Mg/m}^3$  pour une densité initiale de  $1,60 \text{ Mg/m}^3$ . Les déformations volumiques à saturation au sein du remblai varient en fonction de la densité initiale et de la position dans la galerie (la contrainte induite par le poids propre du remblai varie en fonction de la profondeur et est présentée sur la Figure 5). Une estimation des déformations volumiques à saturation avec l'eau de site a été effectuée, en mettant en corrélation les résultats des essais d'hydratation sous contrainte constante (Figure 4) et la contrainte appliquée en fonction de la hauteur (Figure 5). Une distribution homogène de la densité sur toute la hauteur de la galerie est considérée.

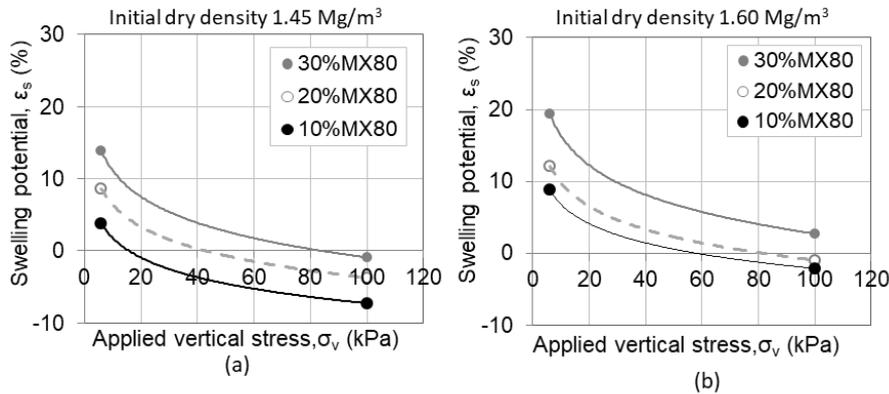


Figure 4. Evolution du potentiel de gonflement pour des mélanges hydratés à l'eau de site, en fonction de la contrainte mécanique verticale appliquée et de la densité initiale : (a)  $1,45 \text{ Mg/m}^3$  et (b)  $1,60 \text{ Mg/m}^3$ .

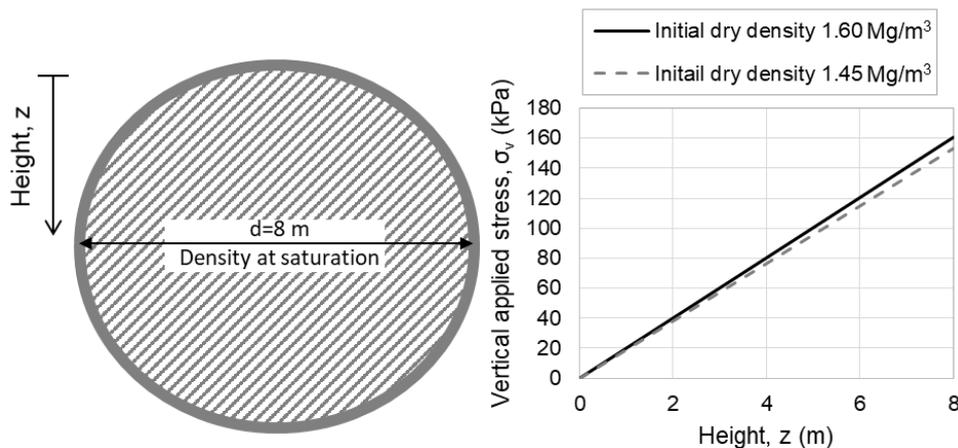


Figure 5. Variation des contraintes appliquées sur le remblai en fonction de sa position (comptée par le haut) et de sa densité de mise en place.

Ainsi, la figure 6 montre les résultats des calculs des déformations en fonction de la hauteur du remblai, mis en place aux densités sèches initiales de  $1,45 \text{ Mg/m}^3$  et de  $1,60 \text{ Mg/m}^3$ . On constate que dans la partie inférieure des remblais les déformations volumiques sont des tassements tandis que les parties supérieures du remblai gonflent. La figure 7 présente les déplacements calculés dans les remblais pour les deux densités initiales de  $1,45$  et  $1,60 \text{ Mg/m}^3$  et les trois teneurs en MX80 (10%, 20% et 30%). En considérant les déplacements moyens sur l'ensemble de la hauteur de la galerie, on observe pour la densité de  $1,60 \text{ Mg/m}^3$  un gonflement pour les teneurs en MX80 de 20% et 30% et un tassement pour 10% de MX80. En revanche pour la densité de  $1,45 \text{ Mg/m}^3$  seul les 30% de MX80 présente un gonflement, les 10% et 20% présentent des tassements des remblais.

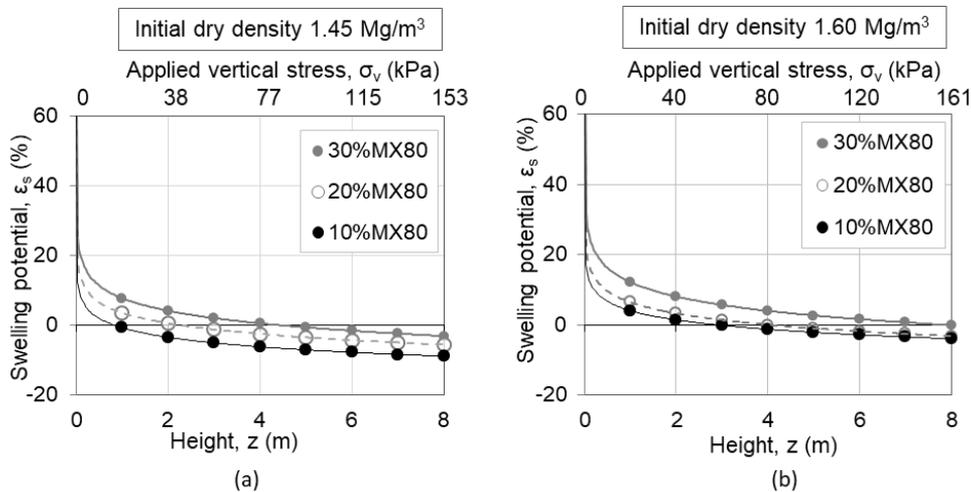


Figure 6. Potentiels de gonflement calculés pour un remblai hydraté à l'eau de site, en fonction de: (i) la contrainte développée par la hauteur du remblai, (ii) le pourcentage de MX80 dans le mélange et (iii) la densité initiale de la mise en place du remblai (a) 1,45 Mg/m<sup>3</sup> et (b) 1,60 Mg/m<sup>3</sup>.

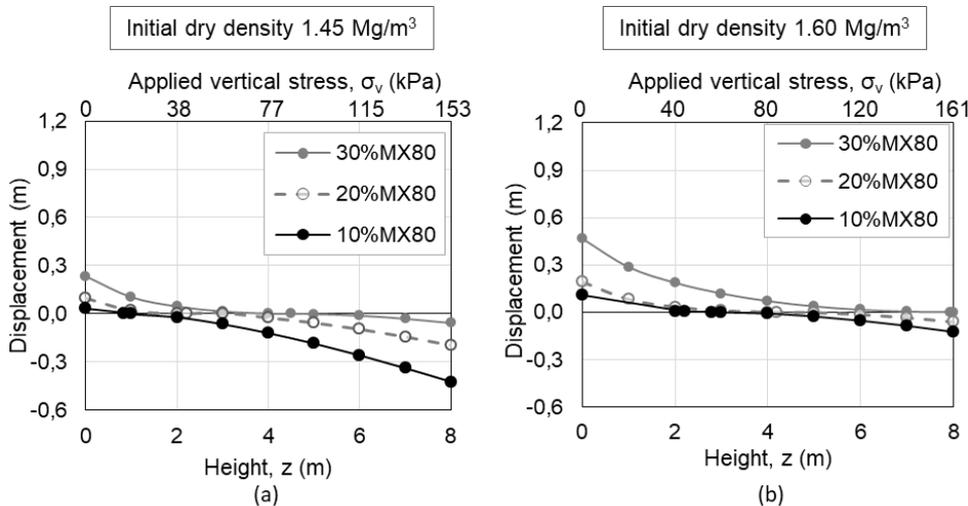


Figure 7. Déplacements calculés pour un remblai hydraté à l'eau de site, en fonction de : (i) la contrainte développée par la hauteur du remblai, (ii) le pourcentage de MX80 dans le mélange et (iii) la densité initiale de la mise en place du remblai (a) 1,45 Mg/m<sup>3</sup> et (b) 1,60 Mg/m<sup>3</sup>.

## 5. Conclusions

Une étude d'un mélange de COx/MX80 en pellets représentant le matériau de remblayage a été réalisée à travers des simulations numériques. La compacité du matériau granulaire à la mise en place a été investiguée par des simulations DEM. La granulométrie donnant l'assemblage des sphères le plus dense est constituée des sphères des diamètres de 16, 10 et 4 mm avec des proportions volumiques de 60, 10 et 30% respectivement. Une densité de la mise en place de l'ordre de 1,45-1.60 Mg/m<sup>3</sup> est attendue pour le mélange des pellets. L'augmentation de la densité est proposée soit par l'augmentation de la hauteur de chute des pellets, soit par l'ajout du sable ou du concassé de pellets de plus petit diamètre.

Une série d'essais expérimentaux sur les différents mélanges de COx et MX80 en poudre a été réalisée pour déterminer les caractéristiques des remblais. Le compactage à l'optimum Proctor des poudres avec de l'eau de site identifie les densités maximales sur une gamme de 18-25% de la teneur en eau pour les mélanges contenant 10-30% MX80 respectivement. La compressibilité œdométrique du matériau à la teneur en eau initiale

est indépendante des pourcentages de MX80. En revanche la densité initiale diminue avec l'augmentation du pourcentage de MX80.

Le potentiel de gonflement du remblai en pellets a été étudié sur des matériaux en poudre à une densité équivalente à celle attendue à la mise en place de l'assemblage des pellets (1,45-1,60 Mg/m<sup>3</sup>). Les essais d'hydratation sous une contrainte de 6 kPa montrent des déformations volumiques de gonflement pour les pourcentages de MX80 de 10%, 20% et 30%. En revanche sous une contrainte de 100 kPa et une densité initiale de 1,45 Mg/m<sup>3</sup> des déformations volumiques de tassements sont observées. Pour la densité initiale de 1,60 Mg/m<sup>3</sup> et une contrainte de 100 kPa des déformations volumiques de gonflement sont mesurées pour 30% de MX80 et des tassements pour les pourcentages de MX80 de 10% et 20%.

A partir des résultats des essais d'hydratation sur des chemins œdométriques, une évaluation des déplacements des remblais installés dans une galerie de 8 m de diamètre est proposée. En résumé, pour développer un gonflement du remblai, il convient d'avoir un mélange comportant au moins 20% de MX80 avec une densité sèche de mise en place de 1,60 Mg/m<sup>3</sup> pour les teneurs en eau initiales des mélanges.

## **6. Références bibliographiques**

- Andra. (2013). The Cigeo project - Meuse/Haute-Marne reversible geological disposal facility for radioactive waste. Project Owner File Public debate of 15 May to 15 October 2013.
- Feng, M., Gan, J. K. M., and Fredlund, D. G. (1998). A laboratory study of swelling pressure using various test methods. *Proceedings of the Second International Conference on Unsaturated Soils (UNSAT-98)*, Beijing, pp. 350–355.
- Imbert, C., Villar, M.V. (2006). Hydro-mechanical response of a bentonite pellets/powder mixture upon infiltration. *Applied Clay Science*, vol. 32, n° 3-4, pp. 197–209.
- Jean, M. (1999). The non-smooth contact dynamics method. *Computer methods in applied mechanics and engineering*, vol. 177, n° 3–4, pp. 235–257.
- Karland, O., Nilsson, U., Weber, H., and Wersin, P. (2008). Sealing ability of Wyoming bentonite pellets foreseen as buffer material—laboratory results. *Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C*, 33, pp. S472–S475.
- Nader, F., Silvani, C., and Djeran-Maigre, I. (2019). Effect of micro and macro parameters in 3D modeling of grain crushing. *Acta Geotechnica*, vol. 14, n° 6, pp. 1669–1684.
- Noiret, A., Bethmont, S., Bosgiraud, J.M., and Foin, R. (2016). DOPAS Work Package 4 Deliverable 4.8 FSS Experiment Summary Report.
- Saba, S., Barnichon, J.-D., Cui, Y.-J., Tang, A. M., and Delage, P. (2014). Microstructure and anisotropic swelling behaviour of compacted bentonite/sand mixture. *Journal of Rock Mechanics and Geotechnical Engineering*, vol. 6, n° 2, pp. 126–132.
- Sridharan, A., Rao, A. S., and Sivapullaiah, P. V. (1986). Swelling pressure of clays. *Geotechnical Testing Journal*, vol. 9, n° 1, pp. 24–33.
- Villar, M. V., and Lloret, A. (2008). Influence of dry density and water content on the swelling of a compacted bentonite. *Applied Clay Science*, vol. 39, n° 1–2, pp. 38–49.
- Yu, A.-B., Zou, R.-P., and Standish, N. (1992). Packing of ternary mixtures of nonspherical particles. *Journal of the American Ceramic Society*, vol. 75, n° 10, pp. 2765–2772.
- Zhang, Z. P., Liu, L. F., Yuan, Y. D., and Yu, A. B. (2001). A simulation study of the effects of dynamic variables on the packing of spheres. *Powder Technology*, vol. 116, n° 1, pp. 23–32.