

EFFETS DE L'ISOTROPIE TRANSVERSE SUR LE COMPORTEMENT VOLUMIQUE THERMIQUE DE L'ARGILITE DU CALLOVO-OXFORDIEN

EFFECTS OF TRANSVERSE ISOTROPY ON THE THERMAL VOLUMETRIC BEHAVIOR OF THE CALLOVO-OXFORDIAN ARGILLITE

Philipp BRAUN^{1,2}, Pierre DELAGE¹, Siavash GHABEZLOO¹, Jean SULEM¹, Nathalie CONIL^{2,3}

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

² *Andra, Bure, France*

³ *maintenant à l'INERIS, Nancy, France*

RÉSUMÉ – Des éprouvettes de l'argilite du Callovo-Oxfordien, soumises à des changements de température sous contrainte isotrope constante, ont montré des déformations isotropes transverses. La partie plastique de la réponse volumique thermo-élasto-plastique observée était principalement due à des déformations perpendiculaires au litage, où l'on soupçonne un lien avec l'eau absorbée. Les déformations thermo-élastiques parallèles au litage correspondent à la dilatation thermique de ses minéraux.

ABSTRACT – Some specimens of the Callovo–Oxfordian claystone submitted to temperature changes under constant isotropic stress exhibited transversely isotropic strains. It is shown that the plastic contribution of the volumetric thermo-elasto-plastic response was mainly due to strains perpendicular to bedding, where the involvement of adsorbed water is suspected. Thermo-elastic strains parallel to bedding nicely correspond to the thermal expansion of the minerals.

1. Introduction

Diverses études ont été menées sur l'impact thermique des déchets radioactifs sur les argiles et les argilites en Europe. Peu de données sont disponibles sur leurs variations de volume en fonction de la température. Tant sur l'argile à Opalinus (Monfared et al., 2011 ; Favero et al., 2016) que sur l'argilite du Callovo-Oxfordien (COx, Belmokhtar et al., 2017a), des variations de volume thermo-élastiques ont été observées à des températures inférieures à la température la plus élevée subie au cours de l'histoire géologique (estimée à environ 50°C dans le COx, Blaise et al., 2014). En revanche, une contraction thermique plastique se produit à des températures supérieures. Les mécanismes physiques contrôlant cette contraction sont mal compris, la plupart des auteurs pensent qu'elle est due à la libération de l'eau adsorbée au sein de la partie argileuse.

Les variations du volume en fonction de la température ont le plus souvent été mesurées de manière globale, sans tenir compte des effets de l'anisotropie transverse. Cette anisotropie résulte, dans les argiles et les argilites, de l'orientation préférentielle des plaquettes d'argile le long du plan de litage. Dans cette étude, nous avons travaillé sur ces effets de manière plus approfondie, grâce à un suivi précis des déformations axiales et radiales à l'aide de jauges de déformation.

2. Matériau et méthodes

2.1 L'argilite du Callovo-Oxfordien

L'argilite du COx 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 sur la frange Est du bassin parisien il y a 155 millions d'années.

À 490 m de profondeur, au niveau du laboratoire souterrain de Bure (URL), l'état de contrainte est (Wileveau et al., 2007 ; Conil et al., 2018) : contrainte verticale $\sigma_v = 12 \text{ MPa}$, contrainte horizontale majeure $\sigma_H = 16 \text{ MPa}$, contrainte horizontale mineure $\sigma_h = 12 \text{ MPa}$, pression interstitielle $u = 4,9 \text{ MPa}$. On obtient une contrainte effective moyenne de Terzaghi $p' = (\sigma_v + \sigma_H + \sigma_h)/3 - u = 8,4 \text{ MPa}$ et une contrainte effective moyenne de Biot de $8,9 \text{ MPa}$ (avec un coefficient de Biot de 0,9, Belmokhtar et al., 2017b).

Au niveau de l'URL, la roche est composée d'une matrice argileuse ($42\% \pm 11\%$ en moyenne) dans laquelle sont incorporés 30% de carbonates, 25% de quartz et une petite quantité de feldspath (Conil et al., 2018). Du fait de la sédimentation et de la diagénèse, la matrice argileuse est composée de plaquettes orientées préférentiellement le long d'un plan de litage correspondant avec le plan horizontal in-situ (Robinet et al., 2012, Delage & Tessier 2020), ce qui apporte un degré d'anisotropie à la structure. La matrice argileuse contient 10-24% d'illite et de smectite en couches mixtes (avec 50-70% de smectite, Yven et al., 2007), 17-21% d'illite, 3-5% de kaolinite et 2-3% de chlorite (Gaucher et al., 2004).

Les échantillons étudiés viennent de carottes horizontales extraites de l'URL de Bure à une profondeur de 490 m. Des éprouvettes (diamètre 38mm, hauteur 10mm) ont été usinées à partir des carottes. La teneur en eau moyenne des deux carottes était de 7,7% (séchage à l'étuve à 105°C) et la porosité moyenne de 18,1% (pesée hydrostatique dans un hydrocarbure), ce qui donne un degré de saturation de 93,9%. Une succion moyenne de 20,1 MPa (potentiomètre du point de rosée Decagon WP4), indiquait une bonne conservation des échantillons avec une désaturation minimale après carottage.

2.2. Cellule isotrope à température contrôlée

Les tests ont été réalisés dans une cellule de compression isotrope thermique (Fig. 1, Belmokhtar et al., 2017a, 2017b ; Braun et al., 2019), qui contient un échantillon entouré d'une membrane en néoprène.

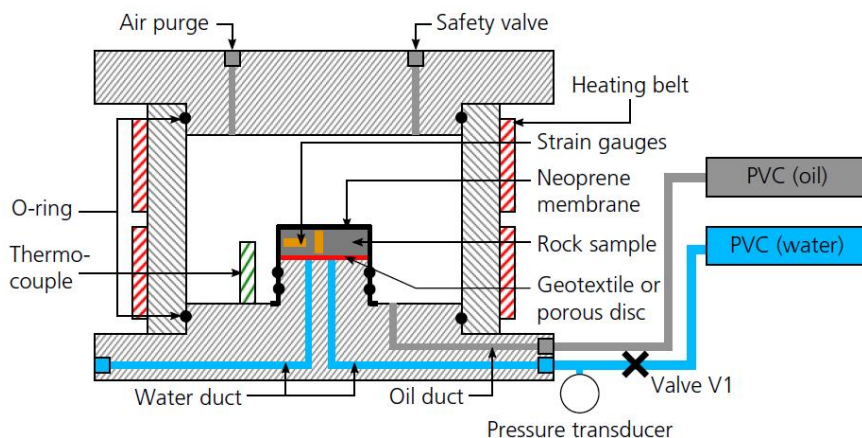


Figure 1. Cellule isotrope à haute pression, assurant le contrôle de la température et la mesure des déformations.

Le drainage est assuré par un disque métallique poreux à la base de l'échantillon. Deux contrôleurs pression-volume (PVC, marque GDS) ont été utilisés pour contrôler la pression de confinement (avec de l'huile) et la contre-pression (avec de l'eau interstitielle

synthétique dont la composition en sel est similaire à celle du COx). Les déformations axiales et radiales ont été mesurées à l'aide de jauges de contrainte collées parallèlement et perpendiculairement au litage. Il est à noter que le contact entre l'échantillon et le disque poreux en acier pourrait induire certains effets de bord par frottement, qui n'ont pas été pris en compte ici.

Les effets thermiques sur les jauges ont été compensés par une jauge témoin collée sur une pièce métallique de référence placée à proximité de l'échantillon, supportant le même chemin de contrainte/température. Un ruban chauffant placé autour de la cellule a permis de contrôler la température ($\pm 0,1^\circ\text{C}$), également mesurée à l'aide d'un thermocouple placé dans la cellule.

Étant donné que les échantillons étaient légèrement désaturés en raison du carottage, du stockage et de la préparation (Monfared et al., 2011 ; Ewy 2015), une resaturation était nécessaire. Les spécimens ont d'abord été consolidés à la contrainte effective in situ, sans ajout d'eau interstitielle. L'eau n'a été injectée qu'ensuite, assurant la saturation dans des conditions de contrainte égales ou supérieures à celles in situ, afin de minimiser le gonflement et l'endommagement. Les échantillons ISO 1 et 4 ont été saturés sous une contrainte de confinement isotrope effective constante de 10 MPa ($\sigma - u = 14 - 4$ MPa), et les échantillons ISO 2 et 3 sous 8 MPa ($\sigma - u = 12 - 4$ MPa), proches des conditions de contrainte in situ.

Une charge thermique progressive (taux de $7^\circ\text{C}/\text{h}$) et l'attente de la dissipation de la pression interstitielle ont été adoptées (Delage et al., 2000 ; Braun et al., 2019). La réponse de la déformation, une fois stabilisée à chaque étape, a été considérée comme représentative de la réponse thermique drainée. Une température maximale de 90°C a été appliquée, alors que dans la plupart des concepts de stockage, la température maximale autorisée dans la roche hôte est de 100°C .

3. Résultats expérimentaux

Quatre essais ont été effectués sur les échantillons ISO 1 - 4, qui ont été maintenus sous contrainte et pression de pores constantes comme lors de la saturation, proches des conditions in situ.

Les déformations axiales et radiales en fonction de la température sous des contraintes moyennes effectives constantes de Terzaghi de 8 et 10 MPa et des températures maximales de 90 et 80°C , respectivement, sont présentées dans la Figure 2. Il est à noter que si les jauges de contrainte horizontales fonctionnent correctement dans les quatre cas, certains problèmes ont été rencontrés avec les jauges de contrainte verticales dans les essais ISO 1 et 2.

En Figure 2, nous pouvons observer une différence significative entre les déformations perpendiculaires (axiales) et parallèles (radiales) au litage. La réponse radiale au cycle de température est raisonnablement réversible, du moins pour les essais ISO 1, 2 et 4, ce qui donne un coefficient moyen de dilatation thermique radiale $\alpha_{d,rad} = 0,51 \times 10^{-5}/^\circ\text{C}$.

À l'inverse, la contraction plastique et l'irréversibilité sont tout à fait apparentes dans les réponses axiales des essais ISO 3 et 4. Ceci est similaire aux observations de Belmokhtar et al. (2017a), qui ont observé une expansion thermique jusqu'à 50°C , suivie d'une contraction à des températures plus élevées. Pendant le refroidissement, ils ont mesuré une contraction linéaire, comme on l'a également observé ici. Les pentes obtenues lors de la phase de refroidissement des essais ISO 3 et 4 sont assez proches, et donnent un coefficient de dilatation thermique axiale plus faible $\alpha_{d,ax} = 0,21 \times 10^{-5}/^\circ\text{C}$.

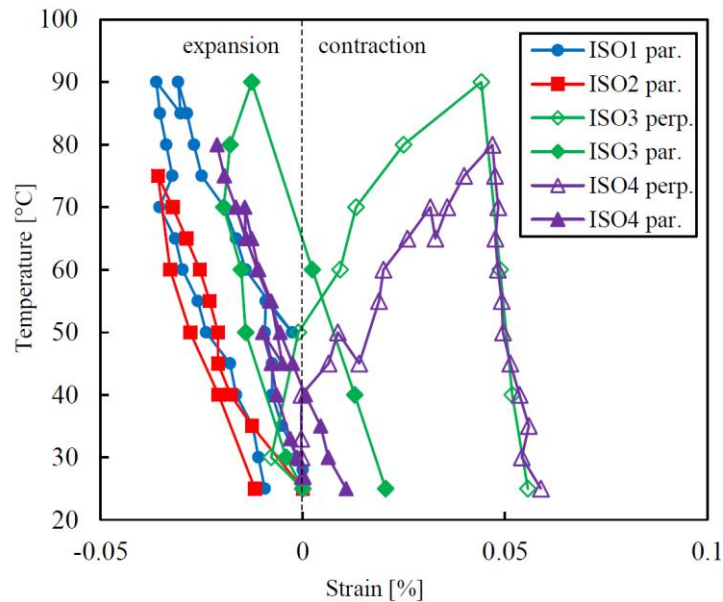


Figure 2. Résultats expérimentaux des essais ISO 1 à 4, montrant les déformations en direction axiale (perpendiculaire au litage) et radiale (parallèle au litage) dans des conditions drainées et de contrainte constante. L'échantillon ISO 2 a été chauffé jusqu'à 75°C, ISO 4 jusqu'à 80°C et ISO 1 et 3 jusqu'à 90°C.

4. Discussion

Les mesures précises des déformations parallèles et perpendiculaires au litage fournissent des informations supplémentaires sur l'anisotropie de la réponse en déformation due à l'orientation préférentielle des plaquettes d'argile dans des directions proches de celle du litage. Le long des cycles thermiques dans les essais ISO 1, 2 et 4, nous observons une réponse de déformation réversible parallèle au litage (alors qu'un certain degré d'irréversibilité est observé dans le test ISO 3). En mesurant la pente de la réponse thermo-élastique linéaire, on obtient le coefficient de dilatation thermique linéaire parallèle au litage $\alpha_{d,rad} = 0,51 \times 10^{-5} / ^\circ\text{C}$.

On peut comparer cette valeur aux données publiées dans la bibliographie sur les coefficients de dilatation thermique des différents constituants minéraux du COx. Dans le Tableau 1, nous indiquons le coefficient de dilatation thermique du quartz, de la calcite et du feldspath, ainsi que ceux de la muscovite, parallèles et perpendiculaires au litage. La muscovite est un silicate en feuillet, non hydraté, comparable dans sa structure moléculaire à l'illite et à la smectite.

Tableau 1. Coefficients de dilatation thermique des minéraux

Minéral	Fraction volumique P_i (%)	Coefficient de dilatation thermique α_i ($10^{-5} / ^\circ\text{C}$)		
		volumétrique	perpendiculaire	parallèle
Muscovite	42	2.48	1.78 ¹	0.35 ¹
Calcite	30	1.4 ²	0.5	
Quartz	25	3.3 ³	1.1	
Feldspath	3	1.1 ²	0.4	

¹McKinstry (1965), ²Fei (1995), ³Palciauskas and Domenico (1982)

En supposant que, dans la direction radiale, la dilatation thermique $\alpha_{d,rad}$ globale est due à la dilatation des divers minéraux, nous pouvons calculer une moyenne pondérée par leur proportion (P_i), en utilisant l'expression suivante :

$$\alpha_{d,rad} = \sum_1^3 \alpha_i P_i \quad (1)$$

En prenant les données P_i et α_i du Tableau 2 (dilatation parallèle pour la muscovite), on obtient une valeur $\alpha_{d,rad} = 0,58 \times 10^{-5}/^{\circ}\text{C}$, assez proche de la valeur mesurée de $0,51 \times 10^{-5}/^{\circ}\text{C}$. Cette approche simplifiée indique que l'origine de la déformation thermique parallèle au litage est bien la dilatation thermoélastique réversible des minéraux.

Dans la direction axiale, cependant, la réponse thermoplastique au chauffage ne peut pas être expliquée par cette approche d'homogénéisation simplifiée basée sur la simple dilatation thermique linéaire des minéraux.

De plus, pendant le refroidissement, les essais ISO 3 et 4 ont fourni, selon la direction axiale, une valeur moyenne $\alpha_{d,ax} = 0,21 \times 10^{-5}/^{\circ}\text{C}$, alors que le calcul de la moyenne selon l'expression (1) donne une valeur bien plus élevée de $1,18 \times 10^{-5}/^{\circ}\text{C}$. En raison de l'orientation préférentielle subhorizontale des plaquettes d'argile, on soupçonne que les changements de volume thermoélastiques (observés le long du trajet de refroidissement) ne dépendent plus de la seule dilatation/contraction thermique des minéraux, mais sont également influencées par la réponse thermique des molécules d'eau adsorbées, soit à l'intérieur des plaquettes (hydratation avec 2 couches de molécules d'eau, Menaceur et al., 2016), soit au niveau de la porosité inter-plaquettes où sont susceptibles d'intervenir des phénomènes de double couche. La raison pour laquelle il en résulte un coefficient de dilatation plus faible n'est pas encore totalement comprise.

5. Conclusions

Les essais thermiques effectués sur des échantillons de l'argilite du COx sous une contrainte effective constante ont montré une dilatation thermoélastique drainée suivie d'une contraction thermoplastique. Cela a confirmé une tendance déjà observée à la fois sur l'argile à Opalinus (Monfared et al. 2011) et sur l'argilite du COx (Belmokhtar et al. 2017).

Les mesures de déformations axiales et radiales par des jauges de déformation ont révélé les effets de l'anisotropie structurelle de l'argilite du COx. Nous avons montré que le comportement volumique global thermo-élasto-plastique était principalement dû à la réponse axiale, dans laquelle les molécules d'eau adsorbées au niveau de particules orientées préférentiellement en fonction du litage semblent être impliquées. On a donc mis en évidence une réponse de déformation particulière qui résulte de la nature isotrope transverse de l'argilite du COx, avec une réponse thermo-élasto-plastique perpendiculaire au litage et une réponse thermoélastique parallèle au litage contrôlée par les coefficients de dilatation thermique des minéraux, sans effets liés à l'eau adsorbée.

6. Références bibliographiques

- Belmokhtar M., Delage P., Ghabezloo S., Conil N. (2017a). Thermal volume changes and creep in the Callovo-Oxfordian claystone. *Rock Mech Rock Eng* 50 (9), 2297 – 2309.
- Belmokhtar M., Delage P., Ghabezloo S., Tang A.M., Conil N. (2017b). Poroelasticity of the Callovo-Oxfordian claystone. *Rock Mech Rock Eng* 50 (4), pp. 871–889
- Blaise T., Barbarand J., Kars M., Ploquin F., Aubourg C. et al. (2014). Reconstruction of low temperature (<100 °C) burial in sedimentary basins: a comparison of geothermometer in the intra-continental Paris Basin. *Mar Pet Geol* 53, pp. 71–87.
- Braun P., Ghabezloo S., Delage P., Sulem J., Conil N. (2019). Determination of Multiple Thermo-Hydro-Mechanical Rock Properties in a Single Transient Experiment: Application to Shales. *Rock Mech Rock Eng* 52 (7), pp. 2023–2038.
- Conil N., Talandier J., Djizanne H., de La Vaissière R., Righini-Waz C., Auvray C. et al. (2018). How rock samples can be representative of in situ condition: A case study of Callovo-Oxfordian claystones. *J Rock Mech. Geotech. Eng.* 10, pp. 613 – 623.
- Delage P., Sultan N., Cui Y.J. (2000). On the thermal consolidation of Boom clay. *Can Geotech J* 37 (2), pp. 343-354.

- Delage P., Tessier D. 2020. Macroscopic effects of nano and microscopic phenomena in clayey soils and clay rocks. *Geomechanics for Energy and the Environment*, doi:10.1016/j.gete.2019.100177.
- Escoffier S., Homand F., Giraud A., Hoteit N., Su K. (2005) Under stress permeability determination of the Meuse/Haute-Marne mudstone. *Eng Geol* 81, pp. 329 – 340.
- Ewy R.T. (2015). Shale/claystone response to air and liquid exposure, and implications for handling, sampling and testing. *Int J Rock Mech Min Sci* 80, pp. 388 – 401.
- Favero V., Ferrari A., Laloui L. (2016). Thermo-mechanical volume change behaviour of Opalinus Clay. *Int J Rock Mech Min Sc.* 90, pp. 15 – 25.
- Fei Y. (1995). Thermal expansion. In *Mineral physics and crystallography: A handbook of physical constants* (ed. T. J. Ahrens), vol. 2, pp. 29–44. Washington, DC, USA: AGU.
- Gaucher G., Robelin C., Matray J.M., Négrel G., et al. (2004). ANDRA underground research laboratory: interpretation of the mineralogical and geochemical data acquired in the Callovian – Oxfordian formation by investigative drilling. *Phys Chem Earth* 29(1), pp. 55 – 77.
- McKinstry H.A. (1965). Thermal expansion of clay minerals. *American Mineralogist: Journal of Earth and Planetary Materials* 50(1-2), pp. 212 - 222.
- 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 Mech Rock Eng* 49(5), pp.1875 – 1888.
- Menaceur H., Delage P., Tang A.M. and 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* 49 (12), pp. 4571- 4586.
- Mohajerani M., Delage P., Monfared M., Tang A.-M., Sulem J., Gatmiri B. (2011). Oedometric compression and swelling behaviour of the Callovo-Oxfordian argillite. *Int J Rock Mech Min Sci* 48, pp. 606 – 615.
- Monfared M., Sulem J., Delage P., Mohajerani M. (2011). A Laboratory Investigation on Thermal Properties of the Opalinus Claystone. *Rock Mech Rock Eng* 44, pp.735–747.
- Palciauskas V.V., Domenico P.A. (1982). Characterization of drained and undrained response of thermally loaded repository rocks. *Water Resources Research* 18(2), pp. 281 – 290
- Robinet, J.-C., Sardini, P., Coelho, D., Parneix, J.-C. et al. (2012). Effects of mineral distribution at mesoscopic scale on solute diffusion in a clay- rich rock: Example of the Callovo-Oxfordian mudstone (Bure, France). *Water Resources Research* 48, pp.1 - 17
- Wileveau Y., Cornet F.H., Desroches J., Blumling P. (2007). Complete in situ stress determination in an argillite sedimentary formation. *Phys Chem Earth* 32, pp. 866 – 878.
- Yven B., Sammartino S., Geroud Y., Homand F., Villieras F. (2007). Mineralogy, texture and porosity of Callovo-Oxfordian claystones of the Meuse/Haute-Marne region (eastern Paris Basin). *Mémoires de la Société Géologique de France* 178, pp. 73 – 90.