



HAL
open science

Anisotropies magnétique et de porosité des argilites du Callovo-Oxfordien du laboratoire souterrain de l'Andra (Meuse/Haute-Marne, Bassin de Paris)

Lionel Eseban

► **To cite this version:**

Lionel Eseban. Anisotropies magnétique et de porosité des argilites du Callovo-Oxfordien du laboratoire souterrain de l'Andra (Meuse/Haute-Marne, Bassin de Paris). Géologie appliquée. Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2006. Français. NNT: . tel-00136774

HAL Id: tel-00136774

<https://theses.hal.science/tel-00136774>

Submitted on 15 Mar 2007

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

École doctorale des Sciences de l'Univers, de l'Espace et de l'Environnement de l'Université Toulouse III-Paul-Sabatier

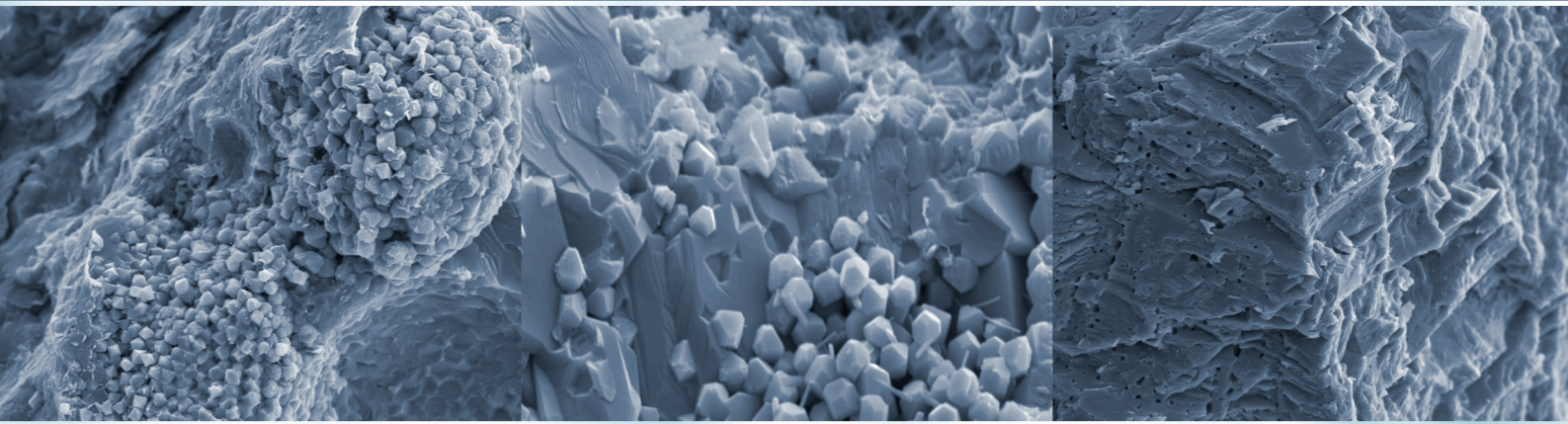
Thèse de Doctorat

Présentée et soutenue publiquement pour obtenir le grade de docteur d'université
Spécialité : Géophysique appliquée, Magnétisme des roches et Pétrophysique

Par
Lionel Esteban

Le 21 septembre 2006

Anisotropies magnétique et de porosité des argilites du Callovo-Oxfordien du laboratoire souterrain de l'Andra (Meuse/Haute-Marne, Bassin de Paris)



Directeurs de thèse :
Jean-Luc Bouchez,
Yves Géraud

Coordinateur Andra :
Alain Trouiller

Composition du jury

Montel Jean-Marc, Professeur
Rochette Pierre, Professeur
Gueguen Yves, Professeur
Lancelot Joël, Professeur
Bouchez Jean-Luc, Professeur
Géraud Yves, Maître de conférence
Trouiller Alain, Docteur

Université Toulouse III
Université Aix-Marseille
ENS Paris
Université Nîmes
Université Toulouse III
Université Louis Pasteur
Direction Scientifique Andra

Président
Rapporteur
Rapporteur
Examineur
Directeur de thèse
Co-directeur de thèse
Invité



Ecole doctorale des Sciences de l'Univers, de l'Espace et de
l'Environnement de l'Université Toulouse III-Paul-Sabatier

Thèse de Doctorat

Présentée et soutenue publiquement pour obtenir le grade de docteur d'université

Spécialité: Géophysique appliquée, Magnétisme des roches et Pétrophysique

Par

Lionel Esteban

Le 21 septembre 2006

Anisotropies magnétique et de porosité des argilites du Callovo-Oxfordien
du laboratoire souterrain de l'Andra (Meuse/Haute-Marne, Bassin de Paris)

Directeurs de thèse

Jean-Luc Bouchez

Yves Géraud

Coordinateur Andra

Alain Trouiller

Composition du jury

Montel Jean-Marc, Professeur	Université Toulouse III	Président
Rochette Pierre, Professeur	Université Aix-Marseille	Rapporteur
Gueguen Yves, Professeur	ENS Paris	Rapporteur
Lancelot Joël, Professeur	Université Nîmes	Examineur
Bouchez Jean-Luc, Professeur	Université Toulouse III	Directeur de thèse
Géraud Yves, Maître de conférence	Université Louis Pasteur	Co-directeur de thèse
Trouiller Alain, Docteur	Andra	Invité

Remerciements

Classiquement dans toutes les thèses, les rédacteurs listent un nombre important de personnes qui ont suscité une aide sous toutes ses formes de près comme de loin. L'habitude montre qu'on oublie toujours des personnes, je vais donc sortir du cadre standard de cette partie pour remercier les groupes et des personnes qui ont été plus qu'importante à mes yeux pour aboutir à mon doctorat.

Je commencerai donc par mes directeurs, Jean-Luc Bouchez et Yves Géraud, qui m'ont tout simplement appris à être un scientifique. Je rajouterai un petit clin d'oeil à J.L. Bouchez qui m'a accueilli dans son équipe dès ma licence aux travers des stages et qui m'a fait confiance jusqu'au bout et même plus.

Mes remerciements se tournent à l'Andra et le GdR FORPRO que j'ai découvert au travers d'Alain Trouiller et toute l'équipe du département scientifique des milieux géologiques de l'Andra, qui m'ont offert une aide et un cadre de travail exceptionnel. Je rajouterai mes remerciements à tout le personnel du site du laboratoire de Meuse/Haute-Marne pour leur accueil et leur aide dans mes phases d'échantillonnages.

Je suis reconnaissant à tous les ingénieurs et techniciens des laboratoires de Toulouse (LMTG, LCC et Laboratoire de chimie), Strasbourg (EOST et IPGP), Marseille (CEREGE) et Nancy (LAEGOS) ainsi que le personnel chercheurs, enseignants et étudiants des laboratoires de Toulouse et Strasbourg.

Un remerciement spécial pour Bernard Andreu et Carine Lézin pour m'avoir offert l'opportunité d'enseigner à l'Université et de tester mes capacités à communiquer et enseigner aux jeunes étudiants.

Un grand merci à mes amis qui m'ont apporté du bonheur et de nombreux moments de détente; en particulier mes deux grands amis Julie (alias Titi) et Edouard (alias Taz).

Je finirai par le plus important à mes yeux, parce qu'ils ont contribué à me préparer à faire face à la recherche: mes très chers parents et mon frère. Merci de m'avoir donné les outils et surtout la personnalité qu'il faut pour tenir les pressions inévitables à la recherche.

Il n'est pas toujours évident de montrer sa gratitude aux personnes qu'on respecte et qu'on apprécie par de simples mots. Je vous donne donc au travers de ce modeste manuscrit, le fruit de 3 ans de recherche qui ont été une aventure humaine exceptionnelle, dans un cadre plus que privilégié donné par l'Andra à ses doctorants.

Merci à tous et bonne lecture...

Résumé

Afin d'étudier la faisabilité du stockage des déchets radioactifs, l'Andra, (agence nationale française pour la gestion des déchets radioactifs) nous donne l'opportunité d'étudier la formation argileuse du Jurassique devant abriter le laboratoire de Meuse/Haute-Marne, à l'Est du bassin de Paris. Ces roches, datant du Callovien et du début de l'Oxfordien, sont des marnes plus ou moins grises formées d'un mélange d'argiles, de carbonate et de silt. Les échantillons, collectés régulièrement le long de la formation du Callovo-Oxfordien à partir de plusieurs forages verticaux et obliques, ont été le sujet d'une étude de minéralogie magnétique et une étude de la fabrique minérale replacée dans le cadre géographique, elle-même reliée à une étude du réseau poreux et de son anisotropie.

L'étude de minéralogie nous aide à caractériser la nature des fractions para- et ferrimagnétique à l'origine de la susceptibilité et de la rémanence magnétique, qui varient en fonction de la concentration en argile/carbonate/silt, ces silts étant composés en partie de grains de magnétite détritique. Dans les niveaux les plus argileux (illites et smectites), la fraction ferrimagnétique est aussi composée de sulfures de fer authigènes, peut-être de greigite, qui accompagnent les pyrites framboïdes omniprésentes. Cette fraction semble correspondre à la fraction de faible coercivité qui a été utilisée pour la ré-orientation des forages verticaux par rapport au Nord magnétique. La fraction de plus forte coercivité est composée des oxydes de fer détritiques, en accord avec la faible valeur de la rémanence naturelle. Ainsi, la coexistence dans la même roche sédimentaire de sulfures de fer et d'oxydes de fer doit-être reliée à des origines distinctes, plutôt qu'à des conditions variables de sédimentation ou de diagenèse. La préservation de ces espèces est attribuée à la très faible perméabilité que le sédiment a acquis après sa compaction.

L'anisotropie de la susceptibilité magnétique (ASM) reflète l'organisation principalement planaire des minéraux argileux, et éventuellement la fabrique de forme de la fraction ferrimagnétique. Comme on s'y attend, l'axe court de l'ASM (K_3) est vertical (perpendiculaire au litage) avec un degré d'anisotropie de 0,3% à 5%; et un axe long (K_1) qui est constant en direction, autour de N-S dans les niveaux plus argileux et autour de NW-SE dans les niveaux plus silteux. L'origine de cette linéation magnétique peut venir soit d'une compaction anisotrope en direction du dépo-centre, soit, hypothèse que nous préférons, d'une orientation des particules parallèlement à la direction des courants venant du NE (Massifs Bohémien et Rhénan) ou venant du NW (massif Londres-Brabant) pendant la compaction.

La fabrique minérale est comparée à l'anisotropie de la connectivité du réseau poreux dans des lithologies représentatives de la formation. Pour documenter l'anisotropie de connectivité, nous avons réalisé des injections au mercure sous haute pression parallèlement aux axes de l'ASM. Nous avons également réalisé des mesures d'ASM après imprégnation avec un ferrofluide sous différentes pressions, dans le but d'obtenir la forme du réseau poreux. A partir de ces données, nous tentons de proposer trois modèles de pore. Dans le premier modèle, valable pour les échantillons les plus silteux, des chemins verticaux semblent contrôler la connectivité. Le second modèle, correspond aux échantillons les plus carbonatés où la plus forte connectivité, parallèle au litage, est quasiment isotrope dans le plan de litage malgré des formes de pore anisotropes. Enfin dans le troisième modèle, porté par les échantillons les plus argileux et les plus imperméables au niveau du laboratoire Andra, la connectivité est également parallèle au litage, et, dans ce plan, le grand axe de connectivité est parallèle à la linéation magnétique.

En conclusion, outre la modélisation pétrophysique du réseau poreux en relation avec la micro-texture de la roche, notre approche minéralogique nous aide à confirmer, et localement à affiner, la stratigraphie séquentielle de cette partie du Jurassique qui correspond à un épisode de refroidissement entre deux épisodes plus chauds marqués par des plateformes carbonatées. Notre approche minéralogique associée aux considérations de fabrique, nous aide à proposer un scénario original de dynamique des apports sédimentaires.

Abstract

In order to test the feasibility of nuclear waste storage, Andra, the French Agency in charge of radioactive waste management, gave us the opportunity to study preserved specimens of Jurassic clay-rich rocks from eastern Paris Basin. These rocks, deposited during the Callovian and beginning of the Oxfordian, are dark- to light-grey marls that consist mainly in a mixture of clay, calcite and silt. Core-specimens regularly collected along the Callovo-Oxfordian formation from several vertical and oblique boreholes, were subjected to a magnetic mineralogy study, and to a petrofabric study with respect to the geographical frame, itself related to a study of the pore network.

The mineralogy study helps to characterize the nature of the para- and -ferrimagnetic fractions at the origin of the magnetic susceptibility and remanence which vary according to the clay/calcite/silt ratios, the latter being mostly made of detrital grains of magnetite. In the clay-rich rocks (illite and smectites), the ferrimagnetic fraction is also made of authigenic sulfides, possibly greigite, which accompany the ubiquitous framboids of pyrite. This fraction seems to equate with the soft coercive fraction which was used to re-orient the vertical borehole cores with respect to the present magnetic north. The hard fraction equates with the iron-oxides, in agreement with the random nature of the natural remanence. Hence, the coexistence in the same sediment of iron-sulfides and iron-oxides is related to distinct origins rather than to variable conditions during sedimentation or diagenesis. Preservation of these species is attributed to the very low permeability that the sediment reached after its compaction.

The anisotropy of magnetic susceptibility (AMS) reflects the zone-axis organization of the clay minerals, and eventually the shape fabric of the ferromagnetic fraction. Expectedly, the short axis of the AMS (K_3) is vertical (perpendicular to bedding) with an anisotropy degree on the order of 0,3-5%, and the long axis (K_1) is constantly trending around N-S in the clay-rich levels and around NW-SE in the silt-enriched levels. This linear fabric is argued to derive either from an anisotropic compaction toward the depocenter, or to parallel the direction of the currents coming from the NE (Bohemian and Rhenan massifs) or from the NW (London-Brabant massif) during sedimentation.

This mineral fabric is compared to the anisotropy of the pore network connectivity in representative lithologies of the formation. We performed high pressure mercury injections parallel to the AMS axes, in order to reflect the anisotropy of connectivity, and AMS measurements after impregnation with a ferrofluid at different pressures, in order to obtain the shapes of the pore network. From these data, we tentatively propose three pore models, the first one for the silt-enriched specimens where vertically pathways seem to control the connectivity, the second one for the carbonate-enriched specimens where the highest connectivity is parallel to bedding, and which is almost isotropic in the bedding plane in spite of an anisotropic pore structure, and the third one for the clay-enriched specimens (at the site of the Andra Laboratory), where the highest connectivity, also parallel to bedding, parallels the magnetic lineation.

In conclusion, in addition to this petrophysical modelling of the pore network, in relation with the rock texture at the micro-scale, our mineralogical approach helped to confirm (and locally refine) the sequential stratigraphy of this part of the Jurassic, corresponding to a colder event in-between two carbonaceous-plateforms. Our mineralogical approach added to fabric considerations helped us to propose an original dynamical scenario of the sedimentary supplies.

Sommaire

Chapitre 1 – introduction au stockage nucléaire.....	1
1.1 L'Energie et les déchets nucléaires	3
1.2. La gestion des déchets nucléaires par l'Andra	9
1.3. Projet de stockage des déchets HAVL	10
1.4. Problématique de la thèse	11
1.4.1. Objectifs	11
1.4.2. Etat des recherches dans le domaine	11
1.4.3. Perspectives: Aspects structuraux locaux et régionaux	13
1.4.4. Architecture du mémoire	13
Chapitre 2 – cadre géologique du bassin de Paris.....	15
2.1. Le contexte géodynamique de l'Ouest européen au Jurassique	17
2.2. Cadre géodynamique du bassin Parisien	20
2.2.1. L'histoire du bassin Parisien	20
2.2.2. Le bassin de Paris au Callovo-Oxfordien	24
2.2.3. Le découpage lithostratigraphique et séquentiel du Callovo-Oxfordien du bassin Parisien	28
2.2.4. La minéralogie du Callovo-Oxfordien du secteur d'étude	34
2.2.5. Origine des apports minéralogiques du Callovo-Oxfordien	37
2.2.5.1. Phases minérales héritées	37
2.2.5.2. Phases minérales diagénétiques	38
2.3. Aspects pétrophysiques de la formation sur le secteur d'étude	40
2.3.1. Les fondamentaux concernant l'espace poreux	40
2.3.2. Organisation des particules sédimentaires	40
2.3.3. Mesures de la porosité et de sa variabilité	40
2.3.4. Modélisation de la porosité	42
2.3.5. Perméabilité et hydrodynamique des argilites du Callovo-Oxfordien	45
Chapitre 3 – principes et méthodes en magnétisme des roches.....	47
3.1. Base du géomagnétisme terrestre et du paléomagnétisme	49
3.2. Origine de l'aimantation des roches	51
3.2.1. Principes	51
3.2.2. Les trois comportements magnétiques	53
3.2.3. Hystérésis magnétique	55
3.2.4. Théorie physique du magnétisme des roches	56
3.2.4.1. Champ démagnétisant	56
3.2.4.2. Domaines magnétiques	57
3.2.4.3. Relaxation magnétique et super-paramagnétisme	58
3.2.4.4. Grains pseudo-monodomaines et taille critique des grains	59

3.2.5. Les différents types d'acquisition de l'aimantation	61
3.2.6. Aimantation des minéraux naturels terrestres	63
3.2.6.1. Minéraux paramagnétiques et diamagnétiques	63
3.2.6.2. Les minéraux ferromagnétiques	63
3.3. Techniques de mesure magnétique	67
3.3.1. Apports de la susceptibilité magnétique	68
3.3.2. Aimantation rémanente et désaimantation	72
3.3.3. Taille de grain et hystérésis	78
3.3.4. Anisotropies magnétiques	81
3.3.5. Statistiques et calcul d'erreur en magnétisme des roches	82
3.3.5.1. Analyses statistiques de l'ASM	82
3.3.5.2. Analyses des coercivités des roches	84
3.3.6. Mécanismes d'acquisition de l'aimantation dans les roches sédimentaires marines	84

Chapitre 4 – apports du magnétisme dans les argilites du Callovo-Oxfordien.....87

4.1. Echantillonnage des argilites du Callovo-Oxfordien	89
4.2. Données lithologiques et séquentielles des forages étudiés	92
4.3. Corrélations entre forages	94
4.4. Etude magnétique des échantillons de forage	97
4.4.1. Minéralogie magnétique	97
4.4.1.1. Susceptibilité et rémanence magnétiques	97
4.4.1.2. Minéralogie magnétique: hystérésis et taille des grains	103
4.4.1.3. Autres paramètres destinés à préciser la minéralogie magnétique	106
4.4.1.4. Tests thermiques d'identification de la minéralogie magnétique	108
4.4.1.5. Spectres de coercivité	111
4.4.2. Utilisation de l'orientation du vecteur rémanent	115
4.4.3. Réorientation des échantillons	118
4.4.4. Anisotropies magnétiques	120
4.4.4.1. Résultats de l'ASM	120
4.4.4.2. Résultats de l'AARA	127
4.5. Etude magnétique à l'échelle du forage	129
4.5.1. Evolution minéralogique du forage EST211 (Article à soumettre au GJI)	129
4.5.2. Minéralogie magnétique du forage EST342	159
4.5.3. Anisotropies magnétiques dans le forage EST211	164
4.5.3.1. Publication Esteban et al. (2006) au C. R. Geoscience	164
4.5.3.2. Anisotropie des grains ferrimagnétiques	180
4.5.4. Anisotropie magnétique dans le forage EST342	181
4.5.4.1. Ré-orientation des échantillons	181
4.5.4.2. Résultats de l'ASM	184

Chapitre 5 – apports de la pétrophysique dans les argilites du Callovo-Oxfordien.....187

5.1 Techniques et méthodes en porosité et géométrie du réseau poreux	189
5.1.1 Principes de la porosité dans les matériaux	189
5.1.2. L'angle de contact γ et la surface de tension σ	191
5.1.2.1. Définition	191
5.1.2.2. Variabilité de γ et σ	192
5.1.3. Relation pression d'injection et seuil d'accès	192
5.1.4. Mécanismes générant des erreurs sur la mesure de la porosité	195
5.1.5. Dispositif expérimental et mode opératoire d'injection au mercure	196
5.2. Anisotropie du réseau poreux	198
5.3. Anisotropie de connectivité du réseau poreux dans les argilites.	
Publication Esteban et al. (2006, sous presse) au Physics and Chemistry of the Earth	199
5.4. Données sur l'ensemble des forages	209
5.4.1. Résultats par injection au mercure dans le forage EST211	209
5.4.2. Résultats des essais d'injection au mercure dans le forage EST205	214
5.5 Accès à l'anisotropie de la connectivité par injection au ferrofluide	216
5.5.1 Définition du ferrofluide	216
5.5.2. Principe et méthode de l'injection au ferrofluide	218
5.5.2.1. Dispositif d'injection au ferrofluide	218
5.5.2.2. Tests d'injection au ferrofluide	219
5.5.3. Géométrie du réseau poreux d'après les données de fabrication magnétique et des injections orientées de mercure.	
Publication Esteban et al. (2006) au GRL	220
5.5.4. Injection de ferrofluide sur l'ensemble du forage ES211	226
5.5.4.1. Données scalaires	226
5.5.4.2. Données vectorielles	228
5.5.5. Modélisation numérique avec le logiciel Pore-Cor	232
5.5.5.1. Principe du logiciel	232
5.5.5.2. Application du logiciel sur les argilites	234

Chapitre 6 – Discussion-conclusion sur les argilites.....239

6.1. La minéralogie magnétique et son message	241
6.2. Le message des anisotropies magnétiques	248
6.3. Message des anisotropies de porosité	252
6.4. Conclusion	253

Chapitre 7 – valorisation des compétences.....	255
7.1. Contexte général du stockage des déchets	258
7.2. Compétences des laboratoires d'accueil	258
7.3. Projet de thèse	258
7.4. Déroulement, gestion et coût des travaux de la thèse	259
7.5. Compétences et qualités professionnelles	261
7.5.1. Les compétences techniques	261
7.5.2. Gestion de projet	262
7.5.3. Communication	262
7.5.4. Diplomatie	263
7.5.5. Language	263
7.5.6. Qualité personnelle	263
7.6. Résultats et impacts de la thèse	263
7.7. Pistes professionnelles	264
Bibliographie.....	265

Chapitre 1

Introduction au stockage nucléaire



Chapitre 1 – introduction au stockage nucléaire

Pour replacer la cadre de la thèse dans son contexte d'étude, on présente dans ce chapitre le projet de stockage des déchets hautement radioactifs, dirigé par l'Andra (Agence Nationale pour la gestion des Déchets Radioactifs), après de brefs rappels sur la notion de radioactivité, d'énergie et de gestion.

1.1. L'Energie et les déchets nucléaires

Notre société a progressivement adapté son mode de vie à l'évolution de la technologie pour un "quotidien" toujours plus agréable. Sa demande en énergie est toujours plus forte et parfois sans limite (Fig. I.1). Elle est maintenant aussi dépendante à l'énergie qu'un enfant est à ses parents. Elle doit alors faire face à la réalité des déchets, de la pollution et de leurs conséquences sur l'environnement et sur l'Homme.

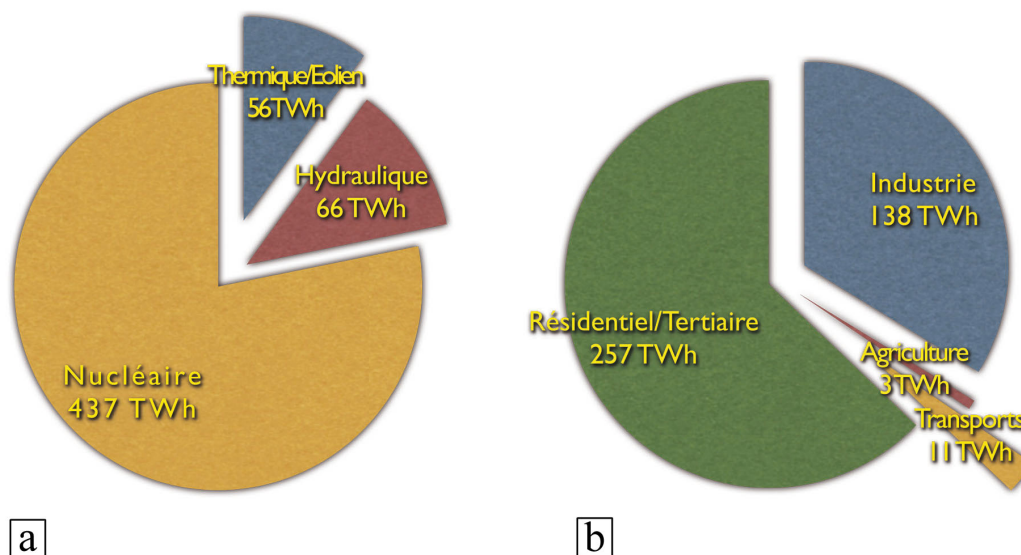


Figure I.1: a) Production par secteur d'énergie et b) consommation nationale d'électricité en 2002 (d'après EDF; www.edf.com).

La France, pendant les années de "vaches grasses" de l'après seconde guerre mondiale, s'était déjà tournée vers l'énergie nucléaire qui a la meilleure rentabilité énergétique et ne pollue pas directement l'environnement (pas d'émission de gaz comme le CO₂, SO₂, NO₂...), contrairement aux combustibles fossiles qui sont plus polluants. Les chocs pétroliers des années soixante-dix ont justifié a posteriori l'importance de cette indépendance énergétique (Fig. I.2). La France est devenue le leader mondial relatif de l'énergie d'origine nucléaire (en absolu, le leader est les Etats-Unis d'Amérique) avec plus de 75% de son énergie électrique produite par les centrales nucléaires, de 1ère et de 2ème génération, puis bientôt de 3ème génération avec l'European Pressured Reactor. Actuellement, la France fournit 22% de l'énergie électrique consommée par les pays européens.



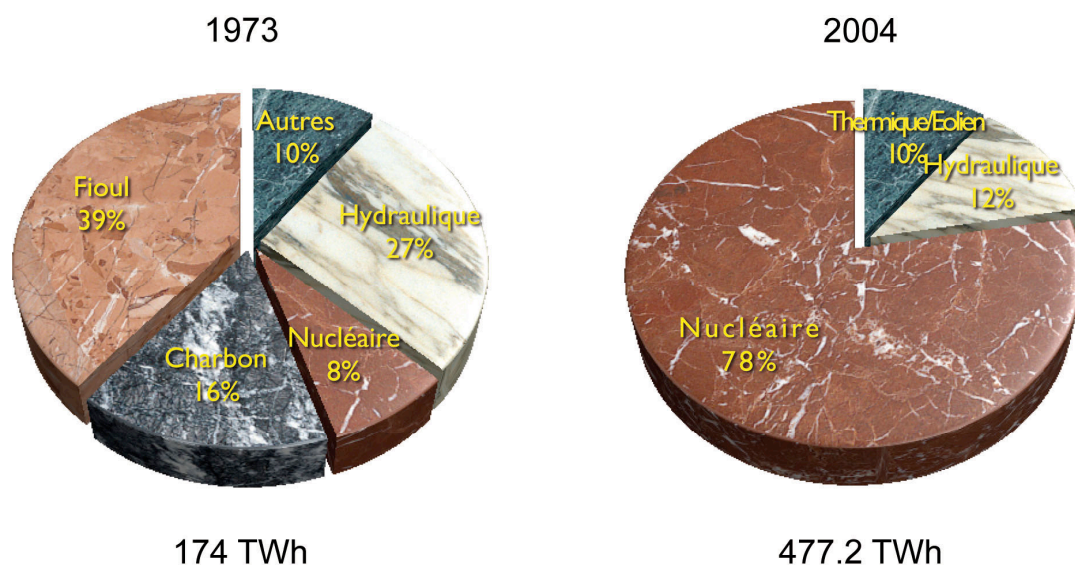


Figure I.2: Production française d'électricité en 1973 et 2004 (d'après EDF; www.edf.com).

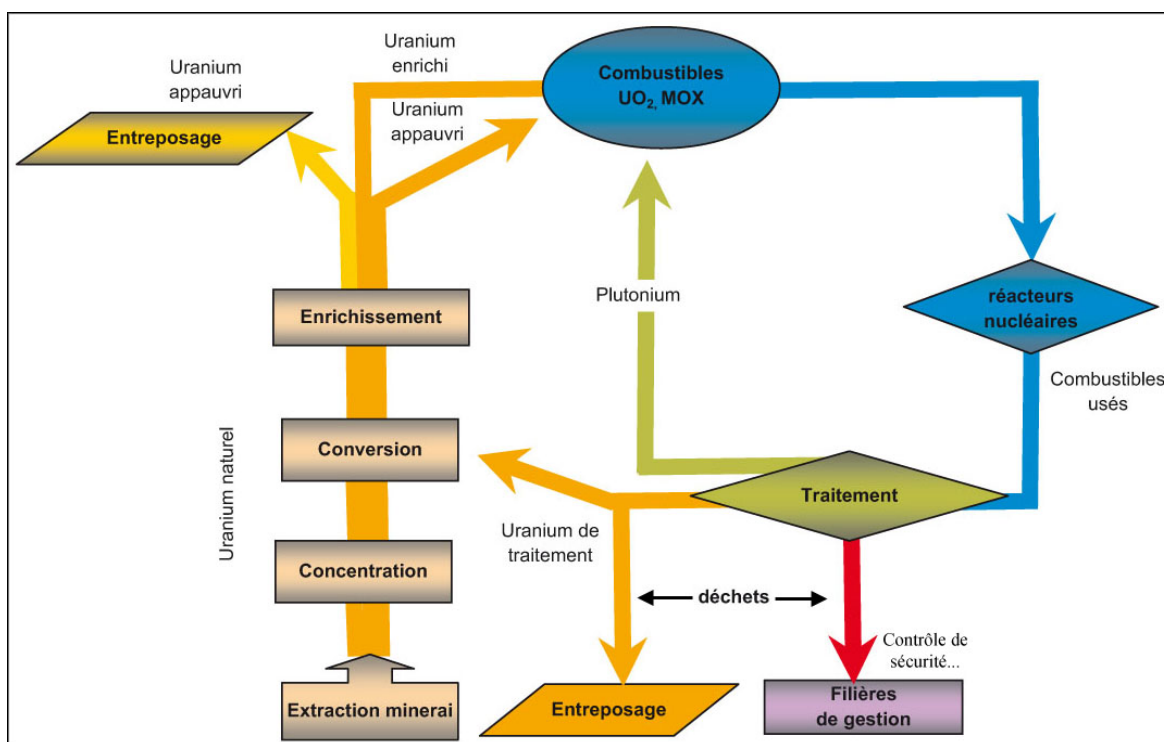


Figure I.3: Le cycle du combustible nucléaire (document Andra; www.andra.fr).

Cette politique de l'énergie comporte l'inconvénient des déchets nocifs pour la santé et l'environnement (Fig. I.3). Compte tenu de leur caractère radioactif, ils doivent être gérés avec grande rigueur. Comment les stocker ou les entreposer... pour s'en protéger autant que possible sont des questions auxquelles il faut répondre de façon sûre et efficace.

La loi de 1991 (loi n°91-1381 du 30 décembre 1991: www.loi-dechets-radioactifs.industrie.gouv.fr/), dite loi "Bataille", proposée par Christian Bataille, est chargée d'aider à répondre à ces questions. Cette loi a envisagé la mise en route d'un vaste programme de recherches et a fixé un rendez-vous quinze années plus tard, soit en 2006 pour faire le bilan des recherches sur le projet. Pour assurer, dans le respect des principes du code de l'environnement (L. 542-1-1), la gestion des matières et des déchets radioactifs, ce programme définit trois principaux axes (voir aussi www.andra.fr/sommaire.php3) où les axes 1 & 3 sont pilotés par le CEA (Commissariat à l'Énergie Atomique) et l'axe 2 est menée par l'Andra (Fig. I.4).

- **Axe 1:** séparation et transmutation des déchets à vie longue pour entreposage de longue durée.
- **Axe 2:** stockage en couches géologiques profondes impliquant la construction de laboratoires souterrains pour en tester la faisabilité dont un laboratoire est situé dans la couche argileuse du Callovo-Oxfordien de l'Est du Bassin Parisien, et fait l'objet de ce travail.
- **Axe 3:** développement des procédés de conditionnement des colis de déchets.

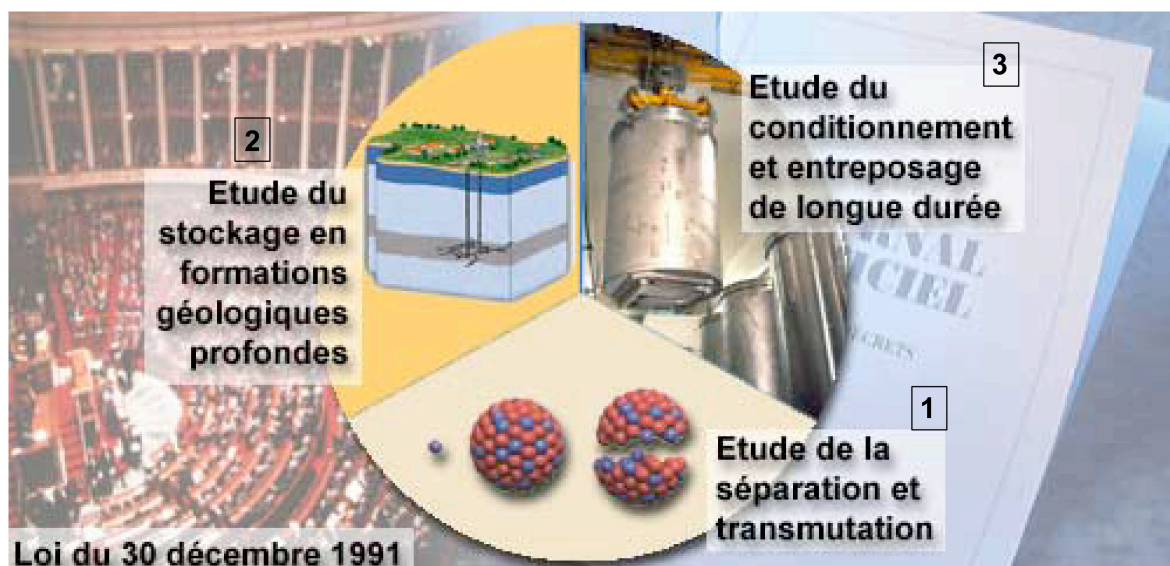


Figure I.4: Les 3 axes de recherches concernant les déchets radioactifs, définis par la loi Bataille de 1991 (document Andra; www.andra.fr).

Les déchets se répartissent en "familles" présentant des caractéristiques analogues et reposant sur deux paramètres, (i) le niveau du rayonnement et (ii) la période* (T) des radionucléides présents.

* La période T est le temps au-delà duquel la radioactivité initiale est divisée par deux. Le Becquerel par gramme (Bq/g) est l'unité qui mesure le rayonnement émis ou l'activité radioactive. Elle va de quelques Bq/g (terre ~ 1Bq/g) à quelques 10¹⁹ Bq/g au cœur d'une centrale nucléaire. 1 Bq = 1 désintégration par seconde et 1 Curie = 3,7.10¹⁰ désintégrations par seconde = 37 GBq. Par-exemple, pour un gramme de matière, l'iode (¹³⁸I) possède une période de 8 jours et une activité massique de 4,6.10¹⁵ Bq/g alors que l'uranium (²³⁸U) possède un T de 4,5 milliards d'années et une activité massique de 1,2.10⁴ Bq/g. Cette longue période de l'uranium est d'ailleurs utilisée comme outil de mesure du temps. A contrario, le carbone ¹⁴C avec un T de 5730 ans, est utilisé pour l'âge des objets créés par nos ancêtres. L'effet biologique de la radioactivité est fonction du rayonnement, du temps d'exposition et de la nature de la cible. La nocivité se mesure en Sieverts (Sv). La limite "européenne autorisée" est de 20 mSv/an. L'exposition moyenne naturelle est de 3,5 mSv/an et en dessous de 100 à 500 mSv la fréquence d'apparition d'une maladie due au rayonnement ne se distingue pas de la fréquence "naturelle" observée.

On distingue les radionucléides à vie courte (≤ 30 ans) des radionucléides à vie longue (>30 ans). La classification française des déchets nucléaires comporte les catégories suivantes: déchets de haute activité (HA); déchets de moyenne activité à vie longue (MA-VL); déchets de faible activité à vie longue (FA-VL); déchets de faible et moyenne activité à vie courte (FMA-VL) et déchets de très faible activité (TFA). L'Andra stocke ces déchets, à l'exception des HAVL qui sont gérés et stockés à la Hague, Marcoule..., dans des sites particuliers en fonction de leur catégorie (899 sites sont répertoriés et consultables sur le site www.andra.fr; Fig. I.5).

	Vie courte <i>période < 30 ans</i>	Vie longue <i>période > 30 ans</i>
Très faible activité (TFA)	Centre de stockage TFA	
Faible activité (FA)	Centre de stockage de l'Aube	Etudes encours pour les déchets graphites et les déchets radifères
Moyenne activité (MA)		
Haute activité (HA)	Etude en cours (loi du 30 décembre 1991)	

Figure I.5: Classification française des déchets radioactifs et filières de gestion à long terme, existantes ou à l'étude (document Andra modifié; www.andra.fr).

Ces catégories de déchets ont des origines variables (Fig. I.6). On trouve, par exemple, uniquement les déchets de type HA et MA-VL dans l'industrie électronucléaire, issus des combustibles usés et non valorisables, c'est-à-dire non réutilisables par d'autres procédés. La catégorie FA-VL est essentiellement celle de déchets contenant du radium et/ou du thorium issus des traitements des matières premières naturellement radioactives, ou encore celle de déchets dits "graphites" issus des enveloppes de protection qui entourent le combustible des centrales électronucléaires de 1ère génération (aujourd'hui arrêtées et en cours de démantèlement). Les déchets de type FMA-VC et TFA sont essentiellement issus des assainissements ou des structures de fonctionnement des industries et des centrales nucléaires.

1 – Introduction au stockage nucléaire

Taux de radioactivité décroissante 

	Déchets HA	Déchets MA-VL	Déchets FA-VL	Déchets FMA-VC	Déchets TFA
Format de déchet	 Conteneur standard de déchets vitrifiés	 Coques et embouts de l'atelier de compactage COGEMA la Hague	  Déchets Radifères Déchets graphites	 Dépôt d'une coque de béton dans un ouvrage de stockage (Centre FMA de l'Aube)	 Déchargement des big-bags (Centre de stockage TFA de l'Aube)
Description	Ces déchets ont une activité moyenne qui dépasse le milliard de Becquerels par gramme. Ils sont issus des combustibles usés, non valorisables, de l'industrie électronucléaire. Ils sont sous forme d'une matrice coulée dans du verre dans une conteneur inox.	Ces déchets ont une activité moyenne qui dépasse le million de Becquerels par gramme. Ils sont issus des structures des combustibles usés et des résidus liés aux fonctionnements des installations nucléaires de l'industrie électronucléaire.	Ces déchets ont une activité moyenne qui varie de quelques dizaines à quelques centaines de milliers de Becquerels par gramme. Les radifères sont issus des minerais d'extraction de l'uranium et autre matière première pour l'industrie nucléaire et des assainissements des centrales électronucléaires. Les graphites sont issus des "chemises" qui entourent le combustible des centrales électronucléaires de 1ère génération, aujourd'hui arrêtées.	Ces déchets ont une activité moyenne variant de quelques centaines à un million de Becquerels par gramme. Ces déchets sont liés à la maintenance et aux fonctionnements des installations nucléaires et parfois issus des démantèlements des installations nucléaires.	Ces déchets ont une activité moyenne inférieure à 100 Becquerels par gramme. Ils sont issus des démantèlements des installations nucléaires et d'industries classiques utilisant des matériaux nucléaires. Ils sont sous forme de déchets inertes (béton, gravats, terres).
	15% de volume pour 99.9% de la radioactivité Française		85% du volume pour 0.01% de la radioactivité Française		



Figure I.6: Catégories et origines des déchets radioactifs (Document Andra modifié; www.andra.fr).

Plusieurs opérateurs sont à l'origine de déchets radioactifs: outre la production électronucléaire d'EDF, il s'agit principalement de la recherche, de la défense, du domaine médical et, accessoirement, de déchets en provenance d'industries non électronucléaires (Figs. I.7 et I.8).

SECTEURS ÉCONOMIQUES	CATÉGORIE DE PRODUCTEURS OU DÉTENTEURS
 PRODUCTION ÉLECTRONUCLÉAIRE	Amont du cycle du combustible Centres nucléaires de production d'électricité Aval du cycle du combustible Établissements de traitement des déchets ou de maintenance Entreposages et stockages
 RECHERCHE	Aval du cycle du combustible (marginal) Établissements de traitement des déchets ou de maintenance Centres d'études et de recherche du CEA civil Établissements de recherche (hors centres CEA) (physique, chimie, recherche biomédicale) Entreposages et stockages
 MÉDICAL	Diagnostic, thérapeutiques, analyses Centres d'études et de recherche du CEA civil Établissements de recherche (hors centres CEA) (physique, chimie, recherche biomédicale) Entreposages et stockages
 DÉFENSE	Amont du cycle du combustible (marginal) Aval du cycle du combustible (marginal) Établissements de traitement des déchets ou de maintenance Centres d'études, de production ou d'expérimentation travaillant pour la Force de dissuasion Établissements de la Défense, DGA, SSA, Armées de terre/air/mer, Gendarmerie Entreposages et stockages
 INDUSTRIE NON ÉLECTRONUCLÉAIRE	Activités industrielles diverses : fabrication de sources, contrôle, objets particuliers Industries non nucléaires utilisant des matériaux naturellement radioactifs Entreposages et stockages

Figure I.7: Secteurs économiques producteurs ou détenteurs de déchets radioactifs (document Andra; www.andra.fr).

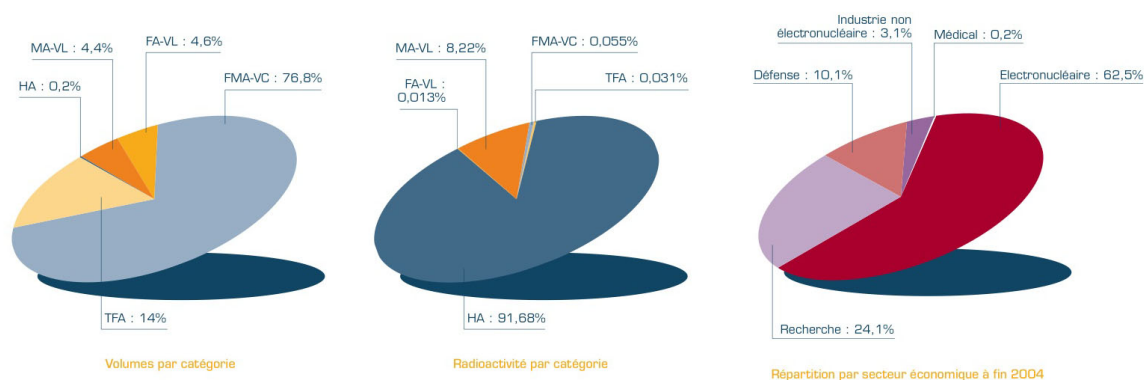


Figure I.8: Répartition du volume et de la radioactivité émis par catégorie de déchets et selon le secteur économique en 2004 (document Andra; www.andra.fr).

Pour 90% de leur volume (Fig. I.8), ces déchets FA-VL et TFA sont stockés (après traitement) en surface sur des sites exploités par l'Andra dans les départements de la Manche et de l'Aube. Les 10% restant, qui concernent plus de 90% de la radioactivité, et dont les périodes d'activité dépassent le millier voire la centaine de milliers d'années sont pour l'instant entreposés à la Hague (Manche), Marcoule (Gard) et Cadarache (Bouches-du-Rhône) (Fig. I.9).

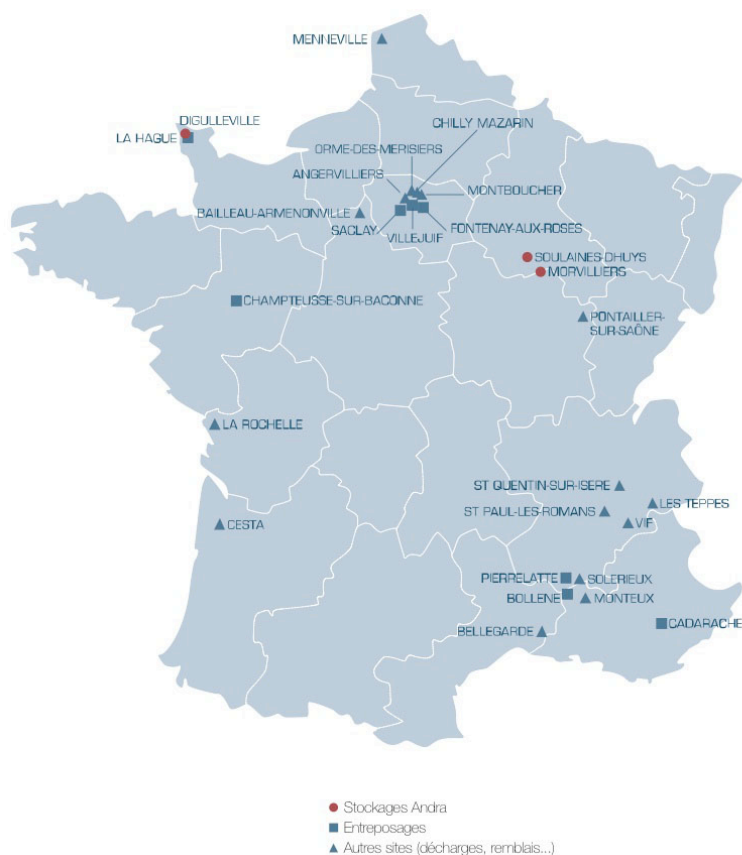


Figure I.9: Principaux sites d'entreposage et de stockage en 2006 (document andra; www.andra.fr).

Au-delà de 2020, et sans faire d'hypothèse sur les choix énergétiques futurs, cette quantité devrait être de l'ordre de 900 tonnes par an. Actuellement, la quantité de combustible usé déchargée chaque année par EDF avoisine 1150 tonnes par an, issue des centrales nucléaires de 1ère et 2ème génération, en considérant un âge moyen de vie des centrales nucléaires de 40 ans, et pour un parc actuel qui possède 7000 tonnes de combustible exploitable. Il existe en 2006 sur le territoire, 58 réacteurs nucléaires, et il y a quelques années 2 réacteurs rapides qui s'appelaient phénix (en cours d'arrêt) et superphénix (actuellement en phase finale de démantèlement) et dont l'ensemble se répartit en 19 sites. La gestion à long terme des déchets qui s'accumulent depuis plus de 40 ans, tant d'origine civile que militaire est une question essentielle que l'Andra a pour tâche de résoudre, via ses recherches de faisabilité d'un stockage réversible ou non, dans des formations géologiques profondes, notamment grâce à la réalisation de laboratoires souterrains.

1.2. La gestion des déchets nucléaires par l'Andra

Cette agence Nationale, créée en novembre 1979 au sein du CEA, puis rendue indépendante en 1991 sous forme d'un EPIC dont l'organisation a été fixée en 1992, est engagée dans 3 missions:

- **industrielle et commerciale**, avec la gestion des centres de stockage en surface des déchets FMA qui constituent environ 90% des déchets, et l'assainissement des installations électronucléaires maintenant arrêtées;

- de **recherche**, par l'étude de la possibilité d'un stockage réversible des déchets HAVL dans les formations géologiques profondes grâce à la recherche en laboratoire souterrain;

- d'**information et de communication** par l'inventaire et la localisation des déchets radioactifs, ainsi que l'information publique et transparente de sa gestion.

Dans le cadre de l'axe 2 de la loi de 1991 concernant le stockage "géologique" des déchets HAVL, l'Andra a poussé des recherches sur 2 types de milieux: l'argile et le granite. Par la suite, le gouvernement a demandé à l'Andra d'inscrire ses travaux dans une logique de réversibilité et a amené à écrire un dossier de synthèse en 2005, rédigé par l'Andra et évalué par la CNE, l'ASN, le groupe permanent et l'AEN.



1.3. Projet de stockage des déchets HAVL

En janvier 1994, le gouvernement a autorisé l'Andra à engager des travaux de reconnaissance de 3 sites (Fig. I.10) possibles sur quatre départements (Gard, Haute-Marne, Meuse et Vienne).



Figure I.10: Sites d'étude de stockage des déchets nucléaires en milieu géologique (document Andra; www.andra.fr).

Les sites du Gard (roches de type siltite) et de la Vienne (roches granitiques) ont été rejetés et, en 1998, le gouvernement a autorisé l'Andra à poursuivre ses recherches sur les départements de Meuse et Haute-Marne.

Pour le secteur de Meuse et de Haute-Marne, la couche du Callovo-Oxfordien présente une épaisseur suffisante (≥ 130 m), et le secteur sélectionné est loin de grandes failles régionales avec des conditions paléogéographiques de dépôt, et donc des propriétés, peu variables. Enfin elles sont peu perméables, avec un pendage faible et un gradient géothermique quasi-inexistant, ce qui est favorable pour construire des galeries. Pour des raisons géomécaniques, la profondeur maximum envisagée est de 600 m à 650 m. A la suite d'une première phase d'étude (synthèse des données existantes: sismique et forages pétroliers, cartographie, réalisation de forages carottés, sismique complémentaire), l'Andra a déposé en juillet 1996 une demande d'Autorisation d'Installation et d'Exploitation d'un laboratoire de recherche souterrain dans le Nord du département de la

Meuse, canton de Montiers-sur-Saulx, commune de Bure. En 1998, le gouvernement a autorisé l'Andra à poursuivre ses recherches avec le creusement d'un laboratoire dans le Callovo-Oxfordien.

Les études de l'Andra menées sur ce site se font en collaboration avec de nombreux intervenants nationaux (CNRS, Universités, BRGM, bureaux d'études et grandes écoles) et internationaux notamment les pays qui suivent une même politique de stockage (Suède, Belgique, Suisse, Etats-Unis, Allemagne, Angleterre, Japon). Des programmes et des groupements de recherche ont émergé de ces projets, par-exemple avec le CNRS, les GdR FORPRO, MOMAS et PARIS. Le GdR FORPRO (Groupement de Recherche sur l'étude des FORMations géologiques PROFondes) est très actif dans l'étude de la faisabilité du stockage dans le site de Bure. Il étudie les conditions de formation et d'évolution des couches sédimentaires de l'Est du Bassin Parisien, la géochimie des eaux de formation et/ou interstitielles des roches, les relations entre la structure microscopique des argiles et leurs propriétés physico-chimiques, l'hydrogéologie passée et présente et participe au développement de nouvelles techniques et méthodes d'études.

1.4. Problématique de la thèse

1.4.1. Objectifs

Le matériel sédimentaire argileux ou marneux est un excellent enregistreur de la dynamique sédimentaire contemporaine du dépôt (courants...), de la dynamique de sa compaction (isotrope ou anisotrope), des contraintes et des petites déformations qu'il a subies ensuite et qui sont enregistrées par des (néo)cristallisations et/ou des réorientations des minéraux argileux et des autres phases associées.

Ce travail est dédié aux argilites du Callovo-Oxfordien provenant de divers forages situés dans et autour du laboratoire de Bure. Il s'inscrit dans la problématique visant à déterminer les propriétés physico-mécaniques des séquences sédimentaires de la formation argileuse abritant le laboratoire d'étude de l'Andra. Il propose de décrire la fabrique minéralogique et texturale de ce matériel en caractérisant ses propriétés d'anisotropie initiale, ainsi que ses propriétés de porosité et de texture, en liaison avec la minéralogie des phases dominantes et accessoires. Plus généralement, on cherche par ces approches à décrypter l'histoire et la dynamique de cette formation. Pour cela, il est primordial de connaître le mode de formation de ces dépôts et leur évolution dans l'espace et le temps ainsi que la texture de cette formation. Ces études doivent permettre de mieux contraindre les propriétés de transferts et donc de prévoir les comportements des fluides à long terme ainsi que le comportement hydro-thermo-mécanique de la couche.

1.4.2. Etat des recherches dans le domaine

Plusieurs travaux détaillés de nature minéralogique et micro-texturale ont été effectués (Universités de Strasbourg, de Nancy, de Grenoble, de Lille, de Poitiers...). Nous avons pris connaissance de ces travaux, essentiellement issus du GdR FORPRO, à partir des documents publiés de l'Andra, notamment ceux de la Journée des doctorants (2002 à 2004) et du volume (Balkema, 2002), "Hydromechanical and Thermomechanical behaviour of Deep Argillaceous Rocks". Tous ces travaux fournissent des repères minéralogiques (phases minérales principales et accessoires), des indications sur les conditions et la nature des transformations diagénétiques impliquant ces phases, ainsi que des indications sur les comportements mécaniques macroscopiques de ces roches.



Concernant les **propriétés magnétiques des argilites**, qui nous concernent plus particulièrement comme descripteurs de minéralogie et d'anisotropie, quelques mesures ont été réalisées par l'équipe de l'ENS Paris dans le cadre de l'Action FORPRO n° 2002-15Rf. La préparation de cette thèse a été accompagnée d'un travail sur quelques échantillons provenant du Kimméridgien surplombant le Callovo-Oxfordien, puis des tests de mesures magnétiques et de sensibilité ont été effectués sur des tronçons de carotte de forage en base et au sommet du Callovo-Oxfordien (rapport Andra, Esteban et Bouchez, 2003; D CC AGEM 01-036).

En ce qui concerne **la structure de porosité**, les travaux antérieurs, notamment ceux issus de FORPRO, montrent que ce matériau présente une porosité relativement homogène en volume et en taille des seuils d'accès, et également une anisotropie de connectivité que nous mesurerons grâce à une procédure nouvelle mise au point à Strasbourg.

Ces résultats permettent de préciser la géométrie du réseau poreux en termes de taille, de connectivité et position relative des volumes de transport et de réaction. Le travail sur le réseau poreux doit être poursuivi en complétant l'étude sur les vides qui constituent le réseau poreux, notamment définir leur anisotropie de forme pour les différentes classes de vides. Il faut également mieux connaître l'arrangement spatial des vides, notamment vis-à-vis des hétérogénéités dans la roche, qu'elles soient naturelles ou induites au laboratoire (Sammartino, 2001; Laego, 2003).

Sur les bases précédentes, cette thèse concerne l'étude conjointe des anisotropies minéralogiques (s.l.) et de porosité des argilites de Bure. Les porteurs de ces anisotropies seront caractérisés, et les anisotropies correspondantes quantifiées. A partir de séries d'échantillons d'une dizaine de cm³ chacun, les anisotropies minéralogiques seront quantifiées par les fabriques magnétiques d'aimantation induite et de rémanence. Sur ces mêmes matériaux, seront quantifiées et modélisées les connectivités de la porosité et les anisotropies de connectivité du réseau poreux par de nouvelles approches d'injection au mercure et au ferro-fluide. En effet, outre les techniques "classiques" de porosimétrie par injection de mercure, on présentera celle qui permet d'injecter un ferro-fluide sous pression hydrostatique. Cette technique permet d'obtenir directement une mesure du volume poreux et de son anisotropie magnétique (Pfleiderer and Halls, 1994). On devrait ainsi être capable de décrire la géométrie, et le fonctionnement en clapets successifs, du réseau poreux aboutissant au couplage entre aspects texturaux et porosité. Le caractère non destructif de cette technique permettra de faire le lien avec les caractéristiques hydrauliques de ces différents volumes (perméabilité). Ces approches complémentaires, appliquées à un nombre limité d'échantillons, fournissent une description texturale et mécanique de l'argilite qui est pertinente à l'échelle de quelques centimètres cubes, intermédiaire entre le grain minéral et la formation elle-même.

1.4.3. Perspectives: Aspects structuraux locaux et régionaux

Les structures à analyser peuvent être classées en "site" ou "secteur" selon qu'on se trouve à proximité ou non du Laboratoire souterrain. En ce qui concerne l'aspect de secteur, et au moins pour les directions et intensités des anisotropies minéralogiques, cette étude fournit une occasion de rassembler des données texturales sur le Callovo-Oxfordien, ce qui nous permet d'élargir notre cadre de réflexion sur les sources d'alimentation, les courants de dépôt, ou sur la compaction et/ou le fluage d'une pile sédimentaire et sur l'origine diagénétique et/ou tectonique de ces structures sédimentaires dans un grand bassin sédimentaire. L'effort principal porte cependant sur les textures des argilites dans le site du Laboratoire, principalement par application du cahier des charges du Projet FORPRO "Caractérisation de l'état zéro de l'évolution à court terme de l'EDZ". Ainsi, les structures et les textures du matériau intégrant toute l'histoire géologique cumulée de la formation, seraient établies à toutes les échelles: centimétrique à kilométrique. Cette analyse permettra enfin de mieux asseoir les critères pétrophysiques distinctifs entre structure "initiale", son évolution à court terme suite aux travaux à proximité et à distance des galeries, et à plus long terme, sur les conditions de drainage à distance du laboratoire.

1.4.4. Architecture du mémoire

Ce mémoire est divisé en 7 parties:

- **Partie I:** La thèse et l'étude du stockage des déchets nucléaires (ce chapitre)
- **Partie II:** Contexte géologique du bassin de Paris: que sait-on de l'Ouest Européen pour les périodes concernant cette étude, et des données sédimentologiques et stratigraphiques en 2D/3D du bassin de Paris.
- **Partie III et IV:** Les messages du magnétisme environnemental: quelles sont les techniques utilisées et leur utilité (partie III); elles seront appliquées sur les échantillons de la formation callovo-oxfordienne, ce qui permettra de formuler les premières interprétations sur le signal sédimentaire et séquentiel (partie IV).
- **Partie V:** L'approche de la pétrophysique et ses conséquences sur la structuration générale des argilites. Cette partie s'appuiera sur les nouvelles techniques d'injection (mercure et ferro-fluide) qui seront d'abord présentées puis appliquées aux argilites, pour enfin proposer les premiers modèles structuraux. L'approche numérique de la perméabilité sera présentée grâce au nouveau logiciel d'analyse de la porosité (Pore-Cor).
- **Partie VI:** Dans cette partie, on discutera les données du magnétisme de celles de la pétrophysique pour mieux comprendre la structuration des argilites et son évolution au cours du temps et de l'espace en soulignant les limites de sensibilité de ces techniques et les questions qui demeurent.

On cloturera ce manuscrit par une conclusion générale qui synthétisera les principaux résultats et la vision qui ressort des argilites et du Callovo-Oxfordien à partir de ces approches couplées. Les perspectives fondamentales et techniques seront abordées pour la suite des travaux à une échelle locale, celle de l'endommagement des galeries (EDZ) du laboratoire qui fait naturellement suite à ces travaux concernant l'état "initial" à l'échelle un peu plus régionale. Ces derniers travaux auraient dû entrer dans le cadre de cette thèse, mais le retard de plus d'un an de l'échantillonnage des galeries, arrive trop tard pour être analysé.





Chapitre 2

Cadre géologique du bassin de Paris



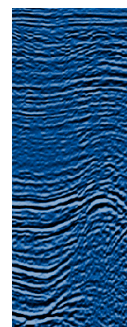
Chapitre 2 – cadre géologique du bassin de Paris

Pour nous aider à interpréter les résultats des études minéralogiques et microstructurales du site de Bure, il nous faut connaître ce que l'on sait de l'histoire du Bassin Parisien. Ce chapitre synthétise le contexte géologique des séries sédimentaires du Bassin Parisien ainsi que les caractéristiques des dépôts dans le secteur d'étude.

2.1. Le contexte géodynamique de l'Ouest européen au Jurassique

Suite à l'orogénèse hercynienne, il y a ~300 Ma, accompagnée d'une imposante chaîne de montagnes et d'un épaissement de la croûte le long de l'arc allant de la Bohême à l'Espagne, l'Europe occidentale connaît un "désépaissement" d'origine gravitaire essentiellement, suivie d'un amincissement lithosphérique généralisé (Ricou, 1994) à partir du Trias inférieur (230 Ma). Ce dernier préfigure l'ouverture de l'Atlantique et "initie" la formation du bassin Parisien. Au Jurassique moyen, entre 155 et 160 Ma, c'est l'Atlantique Central, au Sud de la transformante Açores-Gibraltar, qui commence à s'ouvrir (Fig. II.1), causé par les mouvements anti-horaires des blocs Afrique/Arabie/Inde par rapport à l'Eurasie (Owen, 1983). Ces mouvements expliquent les différentes phases d'extension et de compression de l'Europe de l'Ouest. C'est précisément cette période qui intéresse ce mémoire.

Au Trias-Jurassique, l'Europe occidentale, en cours d'extension, est au carrefour de la Thétys Atlantique non encore océanisée à l'Ouest, au Nord de la transformante Açores-Gibraltar, et de la Thétys Ligure à l'Est et au Sud, qui se referme déjà sur sa marge occidentale, et qui occupe la place du futur arc alpin (Fig. II.1). L'Europe occidentale est alors constituée de vastes zones immergées et peu profondes, à sédimentation à dominante carbonatée (Bathonien: ~165 Ma, plateforme du Dogger), attestant d'un climat aride et sub-tropical, desquelles un ensemble de blocs émergent ou forment des hauts-fonds: Massif Armoricaïn, Massif Central, Vosges, Londres-Brabant, seuil de Bourgogne, une grande partie de la péninsule ibérique. Entre ces blocs et haut-fonds, trois bassins sont localisés au niveau du territoire français aux histoires géologiques voisines (Curnelle et Dubois, 1986): (1) le bassin d'Aquitaine, (2) le bassin Sub-Alpin ou Sud-Est et (3) le bassin de Paris.



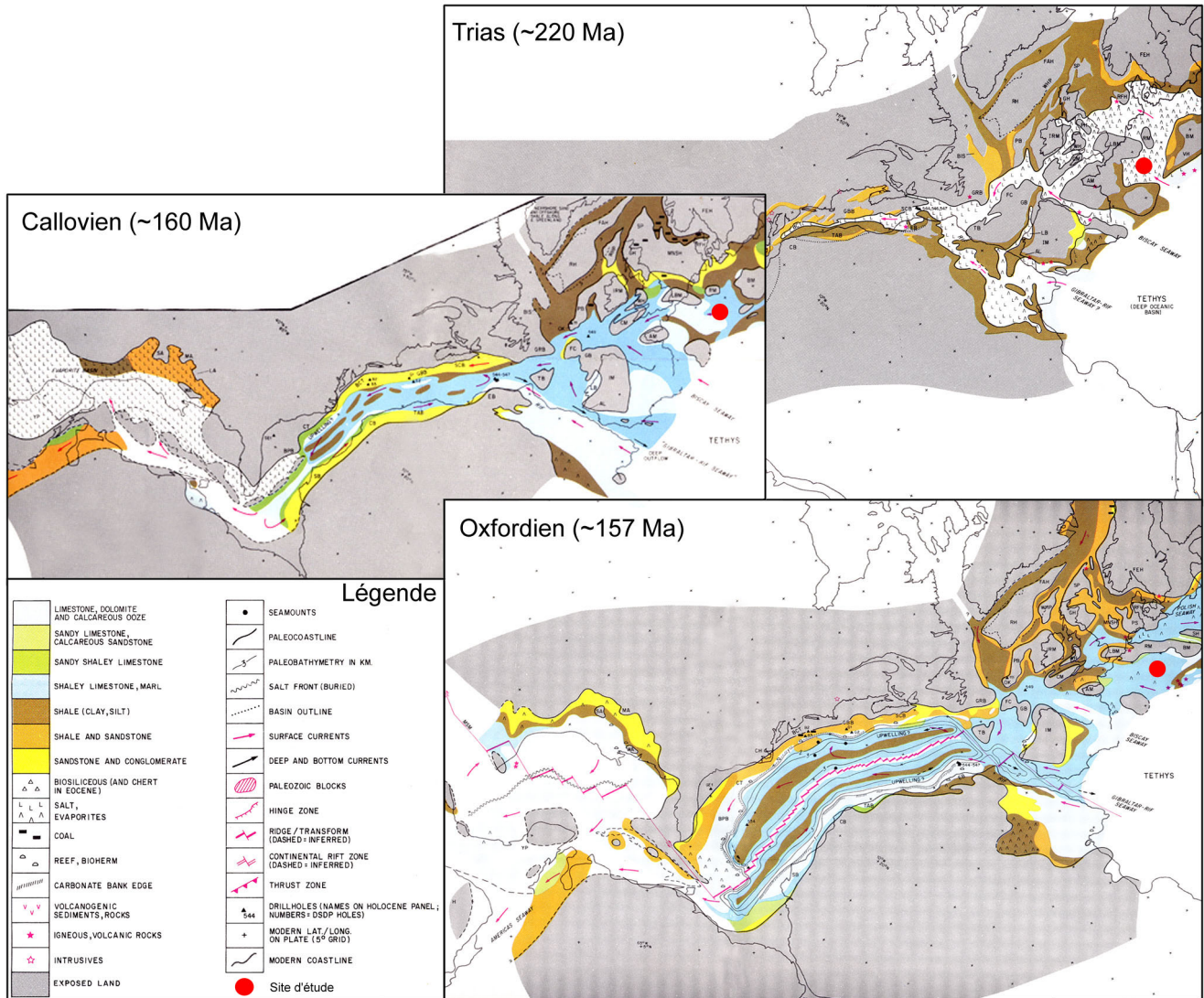


Figure II.1: Carte paléogéographique de l'Ouest Européen aux périodes du Trias, du Callovien et de l'Oxfordien (d'après Dercourt et al., 1985, modifié).

Vers la limite Callovien inférieur-moyen, datée entre 152 et 163 Ma selon Pellenard (2003), et plus précisément à 156,5 Ma selon Palfy et al. (2000), une transgression marine que l'on corrèle sur l'ensemble de l'Europe, et attribuée au rifting de la région nord-thétysienne (Lemoine et de Grancianski, 1988), ennoie presque partout la plateforme carbonatée (Fig. II.2). La sédimentation devient argileuse, complétée par des saccades d'apports détritiques fins (silts: quartz) en provenance des secteurs émergés, sous un climat nettement plus froid qu'antérieurement (Price, 1999; Dromart et al., 2003a&b), et en contexte qui reste relativement peu profond et réducteur (Guillocheau et al., 2000). La sédimentation carbonatée du Jurassique moyen (Dogger) s'arrête, d'autant plus que la matière organique est piégée dans les sédiments marins du Callovo-Oxfordien et pourrait créer ainsi un puits à CO₂, selon ces mêmes auteurs, diminuant sa présence dans l'atmosphère et qui pourrait expliquer l'origine de la diminution de la température du climat (Dormart et al., 2003a&b) et accentuerait la diminution du taux de formation des carbonates. La sédimentation carbonatée reprendra un peu plus de 4,5 millions d'années plus tard (Dromart et al., 2003a&b; Andra, 2005), sous un climat qui, en moyenne s'est réchauffé tout au long du Jurassique.

2 – Cadre géologique du bassin de Paris

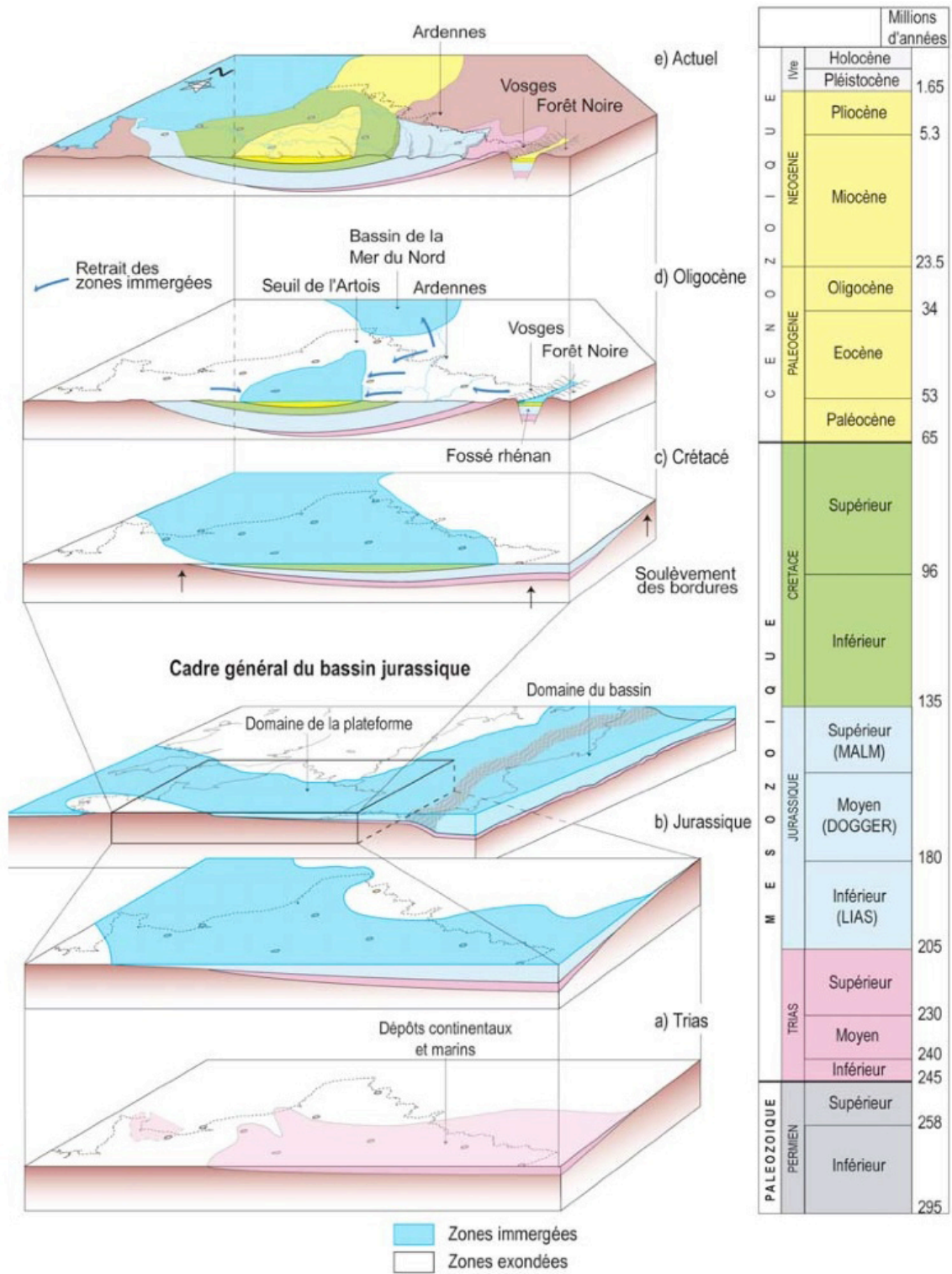


Figure II.2: Formation du bassin Parisien depuis le Paléozoïque (référentiel Andra, 2005).

Le climat de cette période est relativement bien connu, avec des températures stables de type tropical (chaud et humide), ce qui est logique pour une position de l'Europe de l'Ouest aux latitudes de N25° à N30°, favorables à la mise en place d'une plateforme carbonatée (Enay et al., 1993; Ricou, 1994; Thierry and Barrier, 2000). Par ailleurs, Price (1999) montre qu'il aurait existé une courte période plus froide pendant le Callovo-Oxfordien débutant par une transgression marine au Callovien inférieur-moyen (Hallam, 2001) et une autre au Callovien moyen-supérieur, suivie par un net réchauffement à la fin de l'Oxfordien inférieur (Cecca et al., 2005). Cette crise carbonatée pendant le Callovo-Oxfordien, dont l'origine reste mal connue, semble toucher l'ensemble de l'Europe à l'entrée du Jurassique supérieur. Pour certains auteurs, cette crise est d'ordre eustatique (Norris and Hallam, 1995), pour d'autres, c'est la tectonique qui contrôle la subsidence (Guillocheau et al., 2000). Pour d'autres encore, la crise est d'ordre climatique (Dromart et al., 2003a,b) ou d'origine volcanique, qui change la chimie des eaux (Dromart et al., 1996), ou enfin liée à un impact météoritique (Brochwicz-Lewinski et al., 1984). Dans tous les cas, une périodicité semble apparaître en relation avec les variations du niveau marin pendant l'Oxfordien inférieur où se dépose le plus d'argiles, dans une bathymétrie n'excédant pas 150 m (Guillocheau et al., 2000)

2.2. Cadre géodynamique du bassin Parisien

2.2.1. L'histoire du bassin Parisien

Le bassin de Paris fait partie des bassins sédimentaires les plus étudiés au monde. Les premières études datent de 1746 et 1756 par Guettard. Il possède un découpage biostratigraphique exceptionnellement complet et précis qui a permis de diviser l'Europe de l'Ouest en deux provinces paléobiogéographiques, caractérisées par leurs propres taxons (Cariou et al. 1985), finement synthétisées par Thierry et al. (1997) pour le Callovien et par Cariou et al. (1997) pour l'Oxfordien. Malgré cela, la monotonie des dépôts, leur épaisseur, le manque d'affleurement... rendent ce bassin difficile à étudier. Les prospections de diverses compagnies (pétrolières notamment) et les recherches de l'Andra et du BRGM pour la cartographie et l'hydrogéologie, rendent accessible la connaissance de la géodynamique et l'histoire du bassin à travers une analyse fine des cortèges sédimentaires, de la physico-chimie des argiles, des propriétés mécaniques et thermiques des roches.

La configuration actuelle du bassin parisien résulte de la déformation alpine au Miocène d'un socle Cadomien et Varisque supportant de petits bassins permien (Fig. II. 3). Le bassin de Paris est considéré comme intracratonique, formé par subsidence thermique (5m/Km: Cavelier et al., 1980; Curnelle et Dubois, 1986), liée à une période de rifting permo-triasique (Brunet and Le Pichon, 1982).

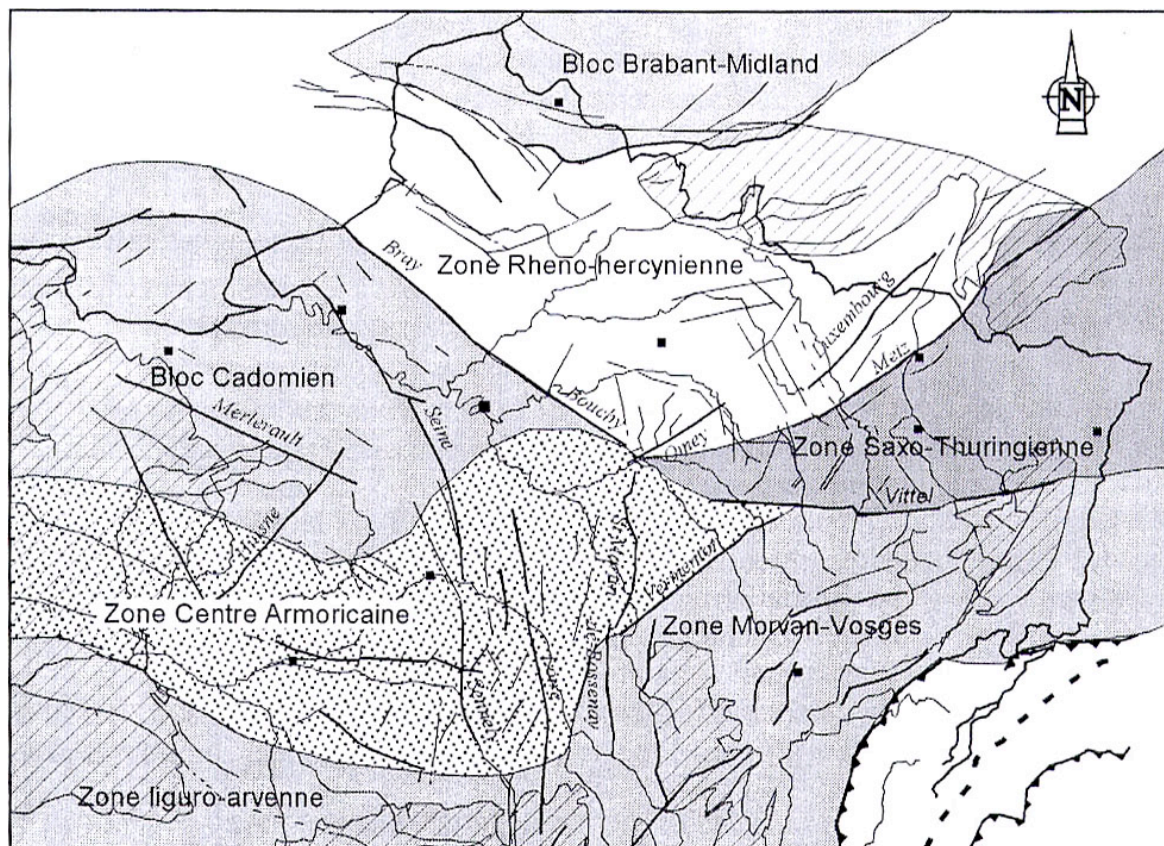
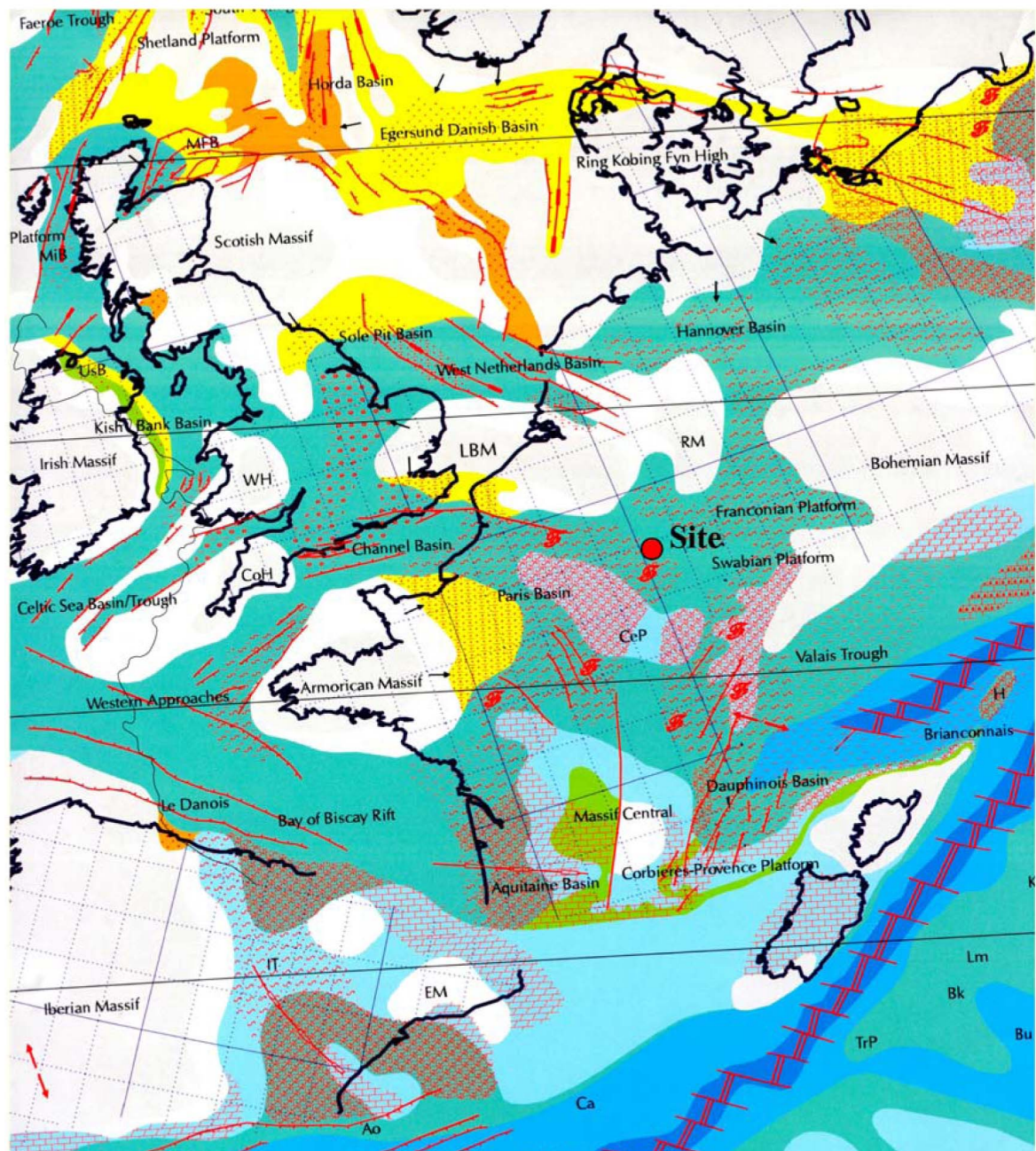


Figure II.3: Cadre structural du bassin Parisien: soubassement Cadomien-Varisque et principales failles (d'après Guillocheau et al., 2000).

Du Trias au Jurassique terminal, le bassin est subsident par extension. Il subit un changement de direction de l'extension pendant l'Aalénien (base du Jurassique moyen), lors de l'ouverture de l'Atlantique central. Du Callovien au Kimméridgien, le bassin passe d'un contexte subsident continental (subsidence thermique associée à une accélération tectonique: Robin et al., 2000) à un domaine océanique de marge passive où les îlots continentaux qui restent à l'émergence (Fig. II.4) sont d'origine hercynienne (massifs Brabant, Armoricaire et Cornouailles).

Au Crétacé inférieur, après une émergence de 15 à 40 Ma, des discordances majeures sont marquées par des compressions NE-SW (Cimmérien à limite Jurassique/Crétacé) contemporaines de l'ouverture du golfe de Gascogne qui tend à diminuer la vitesse de subsidence. La sédimentation, d'origine marine (seconde phase de sédimentation marine du bassin), transgresse sur une surface d'érosion continentale infra-crétacé, avec des apports d'abord de sable, suivis d'argiles, et enfin une généralisation à des dépôts pélagiques crayeux pendant le Kimméridgien supérieur. Après, une extension de l'Albien au Turonien, le régime devient compressif avec une phase de plissement à la fin du Crétacé. Ce régime de contrainte se poursuit au Tertiaire, du Lutétien à l'Oligocène inférieur (compression N-S), à la base du Burdigalien et au Miocène terminal (compression NE-SW). A partir de la limite Pléistocène inférieur/moyen, le bassin subit une surrection et une érosion qui lui donne sa morphologie actuelle (Fig. II.5).



Symboles lithologiques

	Argiles		Argiles
	Sables et Grès		
	Marnes		
	Calcaires		
	Argiles anoxiques		

Environnements de dépôts

	Formations ferrugineuses		Plate-forme carbonatée marine
	Environnement peu profond		Marin carbonaté (plus) profond
	Marin côtier (terrigne)		Marin profond
	Fluviale, lacustre fluvio-lacustre		Bassin océanique

Figure II.4: Carte paléogéographique du bassin Parisien au Callovo-Oxfordien, d'après Thierry et Barrier (2000).

2 – Cadre géologique du bassin de Paris

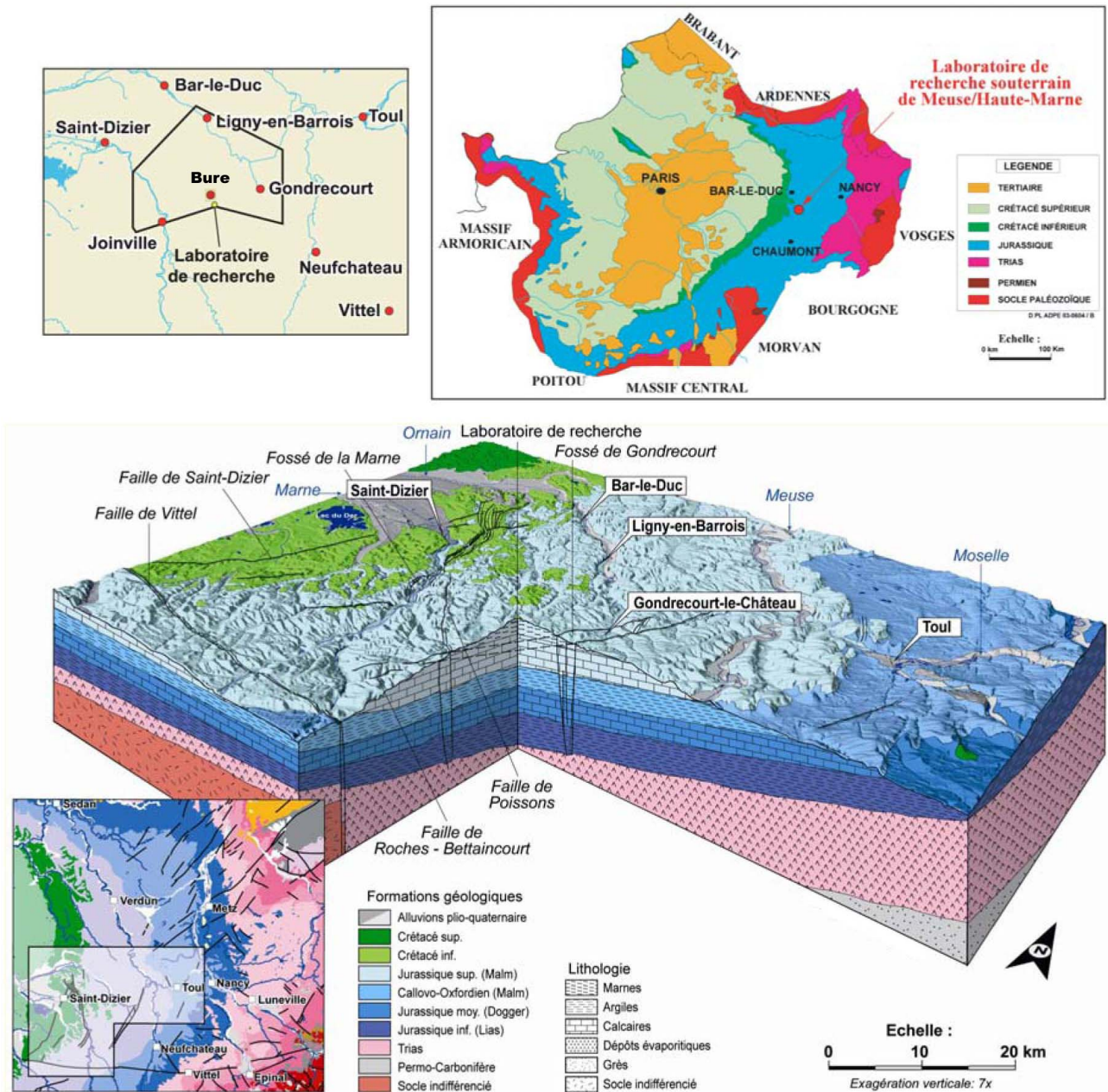


Figure II.5: Morphologie actuelle du Nord-Est du bassin Parisien (document Andra, 2005; www.andra.fr).

Le bassin de Paris a subi quatre grands cycles de transgression/régression de 1er ordre enregistrant des changements d'espace disponible pour la sédimentation dans le bassin, et correspondant chronologiquement à l'ouverture de l'océan téthysien, puis ligure, puis de la mer du Nord et enfin de l'Atlantique Nord, eux-mêmes liés à des phases de rifting péri-européen du Mésozoïque (Jacquin et al., 1998; Graciansky et Jacquin, 2003). Cette histoire, qui a débuté il y a environ 240 Ma, a généré dans la partie la plus profonde du bassin (centre du bassin, sous la faille de Bray) une épaisseur de 3200 m de sédiments, avec 500 m de Permo-Trias, 1500 m de Jurassique, 1000 m de Crétacé et 150 m de Tertiaire.

2.2.2. Le bassin de Paris au Callovo-Oxfordien

La stratigraphie et les formations argileuses du Callovo-Oxfordien de l'Est du Bassin de Paris ont été étudiées par Pellenard et al. (1999, 2003), Guillocheau et al. (2000) et Gaucher et al. (2004) (Fig. II.6). Pour le Callovo-Oxfordien du bassin sub-alpin, les études ont été menées par des bureaux d'étude (Antéa, 1997, 1998), à partir d'affleurements de terrain et des forages pétroliers. L'épisode de dépôt du Callovo-Oxfordien correspond à un changement tectono-eustatique formé par l'ouverture de la mer du Nord qui peut-être subdivisé en 4 "sous-cycles" de 2ème ordre (Cycle de transgression/régression de faciès) décrits par Jacquin et al. (1998).

Dans la région de Bure, les forages rencontrent ce niveau argilo-marneux lié à une accélération de l'accommodation du bassin pendant cette période (Fig. II.7). Les sédiments progradent du Nord-Est vers le Sud-Ouest; le maximum d'épaisseur est de 162 m à une dizaine de kilomètres au nord de Gondrecourt le Château, et le minimum est de 55 m au contact de la faille de Vittel.

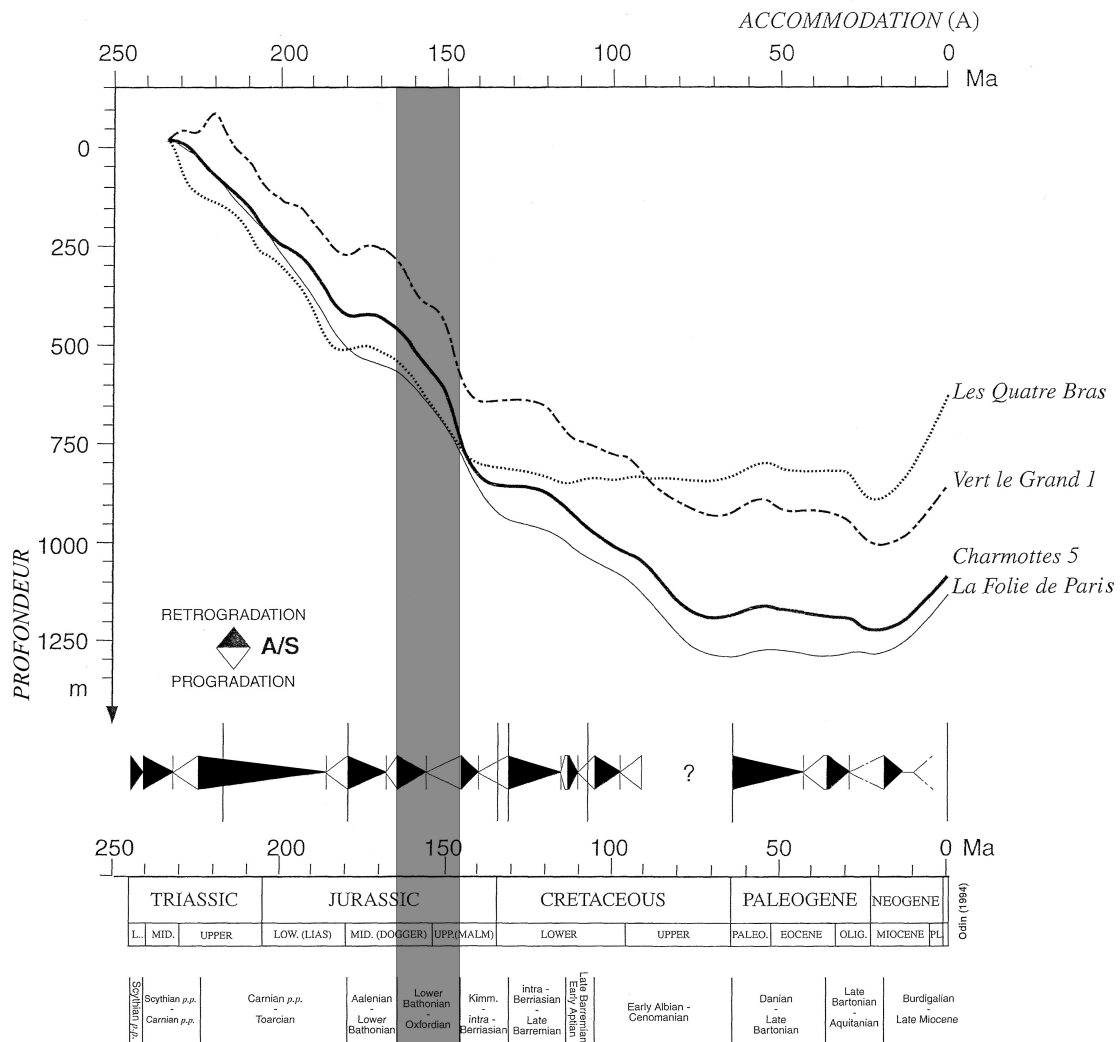
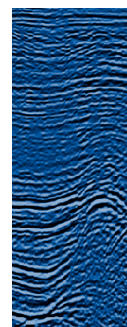


Figure II.7: Courbes d'accommodations calculées dans les formations "Les Quatre Bras", "vert le Grand 1", "Charmottes 5" et "La Folie de Paris": corrélation avec les durées des cycles stratigraphiques de 10-40 Ma (Guillocheau et al., 2000). En gris: période de dépôt du Callovo-Oxfordien.

Cette formation particulière du Callovo-Oxfordien résulte d'un épisode détritique au sein du second cycle de deuxième ordre qui a débuté au Bathonien moyen (~165 Ma) et se termine à l'Oxfordien (~150 Ma) dans un contexte de subsidence à faible gradient thermique (Guillocheau et al., 1999). Actuellement, le gradient thermique sur le site Andra est en moyenne de 2.5°C/100 m, et peut atteindre un maximum de 3.6°C/100 m à proximité des failles (la marne) et un minimum de 2.2°C/100 m au centre de la zone d'étude (Grataloup, 2004; Andra, 2005). Du Bathonien moyen à l'entrée du Callovien, on trouve des accumulations de sédiments de forte énergie, de type oolithique et bioclastique, générant une assise de 150 m et isolant des hauts fonds comme le seuil de Bourgogne. Entre le Callovien moyen et l'Oxfordien inférieur, la transgression marine se traduit par des argiles et des marnes qui caractérisent la formation. A la fin de l'Oxfordien moyen à supérieur, une accélération du taux de dépôts de carbonate comble le bassin (Robin et al., 2000) avec une progradation générale du Nord vers le Sud.

La structuration globale des dépôts du Callovo-Oxfordien est monoclinale avec un pendage de 1° à 1,5° vers le centre du bassin (Fig. II.5). Le Laboratoire de l'Andra est situé à une vingtaine de kilomètres au Nord de la faille de Bray-Vittel orientée Est-Ouest (Fig. II.8) qui sépare le domaine ardennais au Nord du domaine morvano-vosgien au Sud (Guillocheau et al., 2000). Des failles normales post-sédimentaires et les fossés d'effondrement (Fig. II.8) de Gondrecourt-le-Château (NNE-SSO) et de Joinville (NNE-SSO) encadrent le secteur d'étude de l'Andra, avec des rejets verticaux décimétriques pouvant localement atteindre les 100 m. L'interprétation dynamique de ces failles suggère que le bassin de Paris a subi une extension NE-SW au Dogger puis WNW-ESE au Malm, mais apparemment sans mouvement syn-sédimentaire des failles de la Marne pendant le Callovien et l'Oxfordien inférieur (Grégoire, 2003). Ces régimes tectoniques n'ont généré aucun changement lithologique brusque entre l'Oxfordien inférieur et moyen. Par ailleurs, les fossés de Gondrecourt et de Joinville (Fig. II.6 & 8), proches du site, se sont formés à l'Oligocène (Lacombe et al., 1990) et n'ont donc pas d'influence sur le Callovo-Oxfordien.



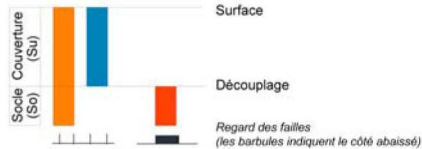


Classement absolu des structures :

Extension cartographique
L'épaisseur des traits indique le caractère :
Principal (P) ($L > 10$ km)
Secondaire (S) ($1 < L < 10$ km)
Mineur (M) ($l \sim 1$ km)

Enracinement

Les couleurs indiquent les couches affectées :



Indice de fiabilité :

- A : Très fiable**
(tracé bien contraint, calé sur les profils sismiques)
 - B : Fiable**
(tracé relativement contraint, éventuellement décalé par rapport au profil, continuité et prolongement latéraux à préciser)
 - C : Peu fiable**
(tracé non contraint, extrapolé, non observé sur les profils ou décalé par rapport aux profils)
 - D : Non vérifié**
(tracé datant des années 1970, et/ou non vérifié sur un profil sismique, et/ou établi uniquement d'après les données de surface)
- Modifications par rapport au tracé cartographique de 2002

Figure II.8: Cadre structural du secteur de Meuse/Haute-Marne (document Andra, 2003; www.andra.fr).

La fracturation de petite taille, mesurée en surface et au cours du creusement des puits d'accès au laboratoire souterrain, de longueur décamétrique et d'extension verticale métrique, est composée de diaclase, orientées selon deux familles de réseaux lâches, de directions N40°-N60° et N130°-N150° (Fig. II.9), de fentes de tension, de fractures liées aux tassements différentiels, et de joints stylolithiques.

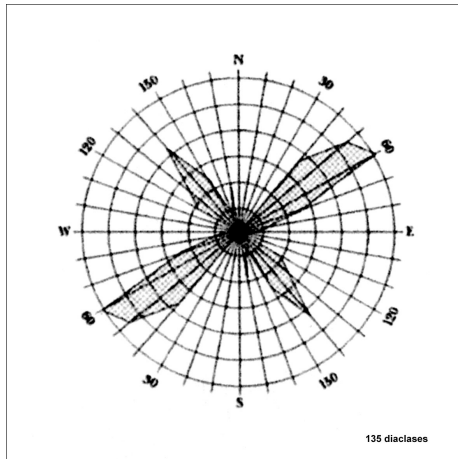


Figure II.9: Orientation des diaclases de surface, dans la région de Bure (Andra, 1997).

L'orientation des composantes horizontales de la contrainte a été mesurée par l'ovalisation des forages (Fig. II.10), par les ruptures en paroi ou "breakouts" (Heitz, 1997; Wileveau., 2004; Wileveau and Desroches, 2005a) et par de la fracturation hydraulique (Andra, 2005). Celles-ci montrent que la contrainte mineure a une direction moyenne N54°E \pm 7° dans le Callovo-Oxfordien. La direction de la contrainte majeure est à N155°E \pm 10° (Fig. II.11; Vinsot et al., 2004).

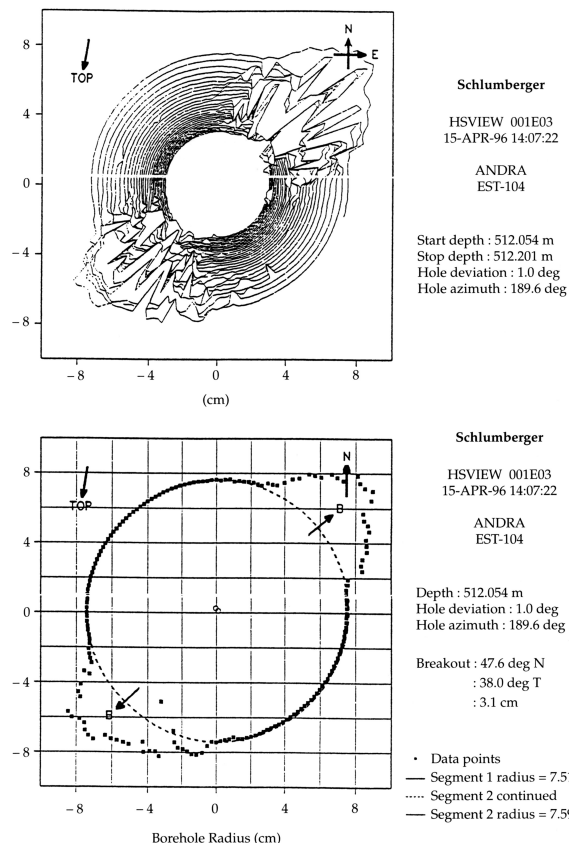


Figure II.10: Ovalisation en forage et "breakout" (EST104; 512 m) indiquant un σ_{HMAX} autour de 155° (Andra, 1997).



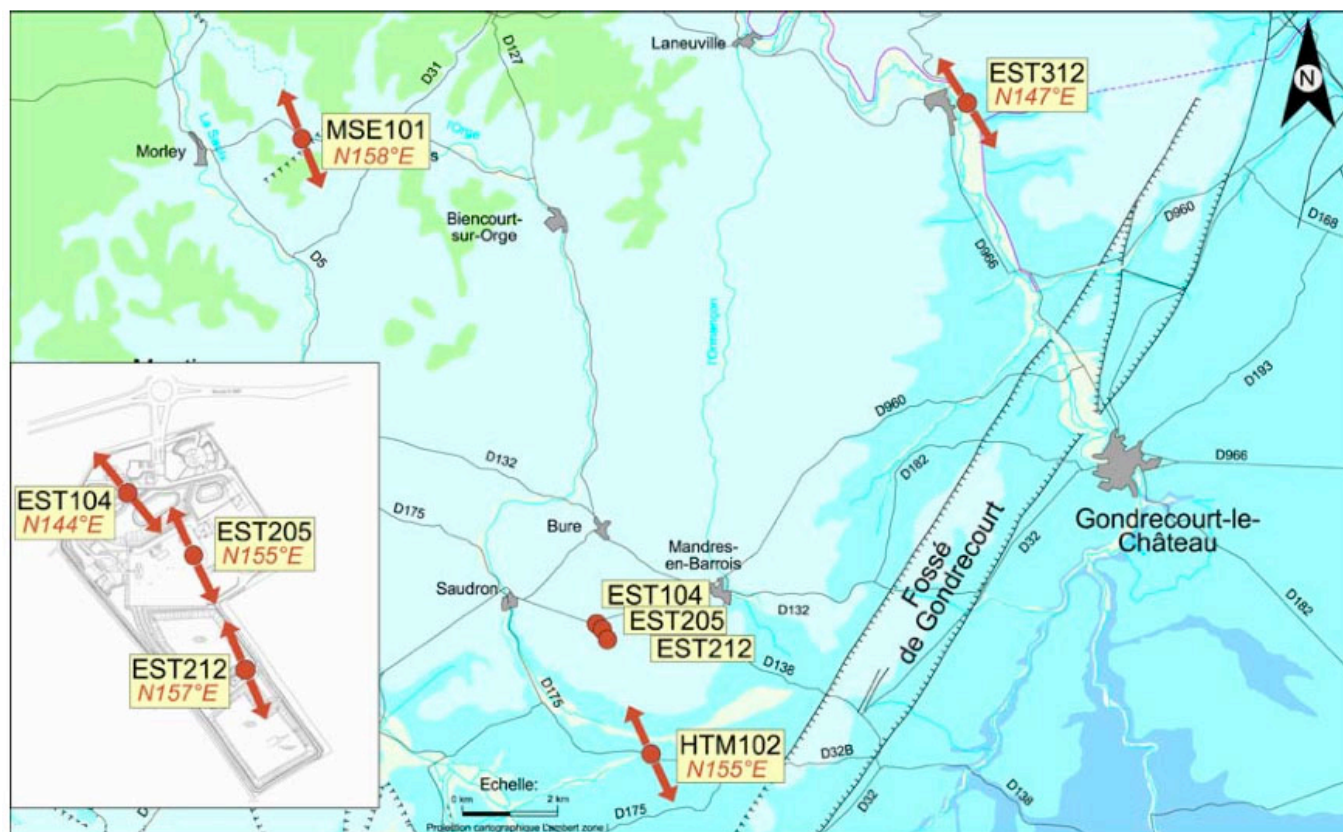


Figure II.11: Carte des contraintes horizontales majeures (σ_H) dans le secteur d'étude (référentiel Andra, 2005).

2.2.3. Le découpage lithostratigraphique et séquentiel du Callovo-Oxfordien du bassin Parisien

La chronostratigraphie du Callovo-Oxfordien s'est appuyée essentiellement sur l'étude des ammonites (Thierry, 2005), et accessoirement sur d'autres faunes (Elion, 2001). Ces auteurs ont repéré quatre sous-étages dans le Callovo-Oxfordien (Fig. 12):

- Callovien moyen : Zones à Jason et Coronatum constituées d'argilites silteuses ;
- Callovien supérieur : Zone à Athleta et Lamberti, d'épaisseur réduite, plus carbonatée (correspondant au « repère oolithique inférieur » dans le bassin) ;
- Oxfordien inférieur : la zone à Mariae d'une durée de 2,1 à 2,3 Ma (Ravenne et Trouiller, 2005), très riche en argile dont l'épaisseur peut dépasser 50 mètres suivie de la zone à Cordatum, épaisse de quelques dizaines de mètres, qui devient plus carbonatée à son sommet ;
- Oxfordien moyen : la zone Plicatilis est peu épaisse et plus riche en carbonates, elle correspond au sommet de la formation du Callovo-Oxfordien. La zone Transversarium correspond aux dépôts de plateforme de « l'Oxfordien calcaire », avec apparition de faciès récifaux.

L'étude de stratigraphie séquentielle (Andra, 2005) permet de distinguer 3 cycles sédimentaires de durée de 1 à 4 Ma. Ce sont donc des séquences d'ordre 3 (Diastrata, 1995, 2001, 2003) en relation avec les variations du niveau marin relatif (Fig. II.12). On distingue des surfaces remarquables telles que les surfaces de transgression (ST), des surfaces d'inondation maximales (SI) ainsi que des limites de séquence (LS). Ces surfaces sont callées sur les repères biostratigraphiques, ce qui fournit des références isochrones, ou à défaut, des corrélations entre forages, variations enregistrées en milieu de dépôt calme et avec peu ou pas de mouvements tectoniques, au moins dans le secteur d'étude. Ainsi, les SI sont les lithologies les plus riches en argile alors que les LS sont plus riches en carbonate (Fig. 13). Ces unités lithologiques délimitées par ces surfaces remarquables sont numérotées de Co1 à Co11 (Fig. II.16) selon Pellenard (2003), ou de C2a à C2d (Fig. II.13) selon l'Andra (2005).

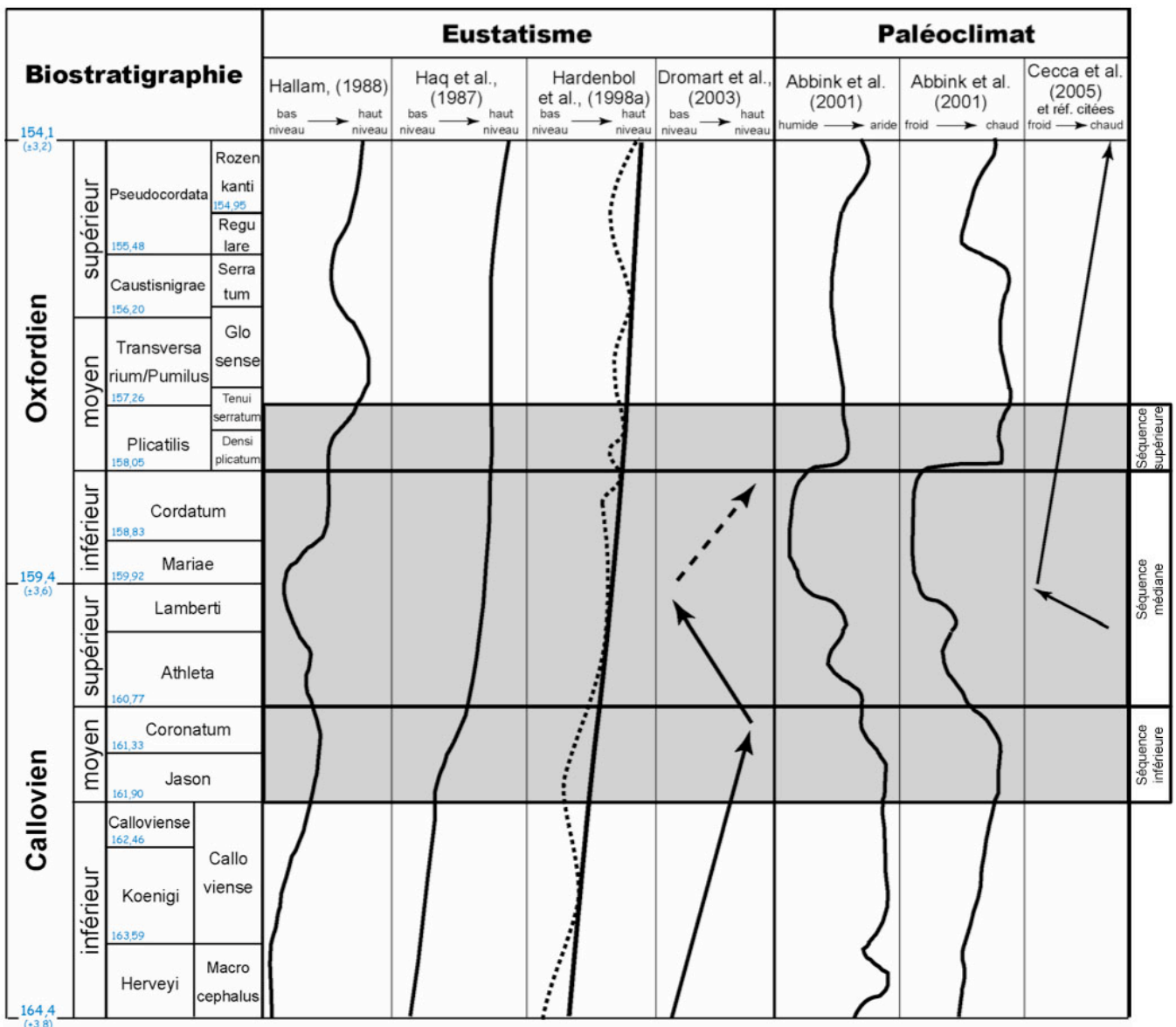


Figure II.12: Découpage biostratigraphique du Callovo-Oxfordien et relations climat/eustatisme (Hautevelle, 2006). En gris: domaine des argilites du Callovo-Oxfordien et son découpage séquentiel.

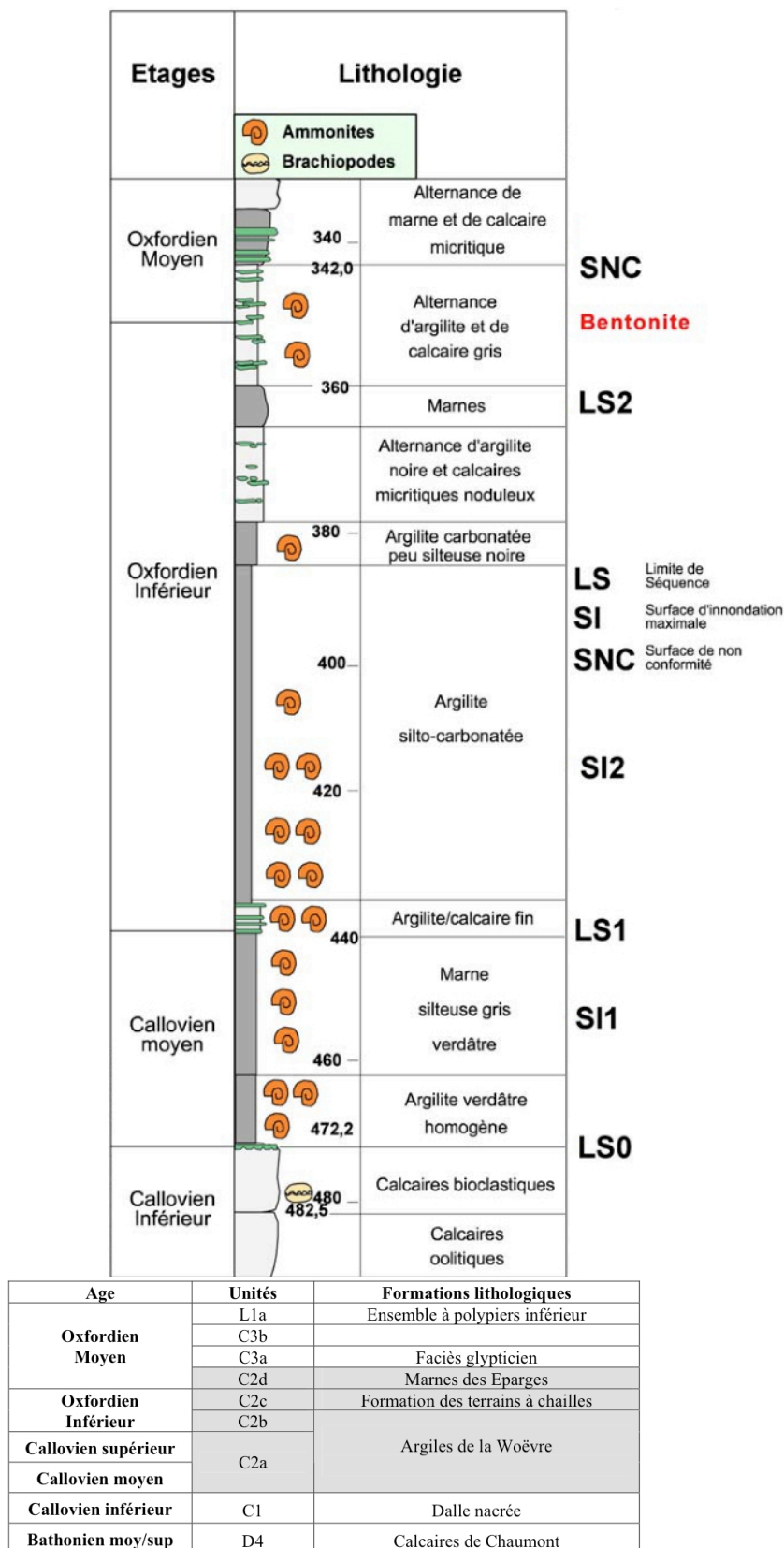


Figure II.13: Lithologie générale du Callovo-Oxfordien avec les surfaces de séquences spécifiques (Pellenard, 2003) et les noms des unités lithologiques simplifiés (Andra, 2005).

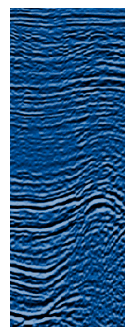
Plus spécifiquement, les 3 séquences au sens de Vail, c'est-à-dire de 3^{ème} ordre emboîtées dans un cycle de second ordre (Andra, 2005) présentent des caractères propres qui les distinguent:

- **La séquence inférieure** (Callovien Moyen: zones à Jason et à Coronatum) repose sur la “dalle nacrée”, ou calcaires bioclastiques et oolitiques, qui s'est formée entre le Bathonien et la fin du Callovien inférieur. Le sommet de cette dalle nacrée correspond à une surface durcie et souvent perforée qui semble présenter localement des indices d'émersion sur la plateforme bourguignonne (Collin, 2000). Elle est bien visible en diagraphies de forage où elle forme un décrochement, ce qui sert de repère isochrone entre les forages. La séquence inférieure, installée sur cette discontinuité, correspond à un apport brutal d'argilites silteuses homogènes, équivalent stratigraphique des argiles de la Woëvre inférieure, sans structure sédimentaire apparente, pas ou peu bioturbées. Ceci indique un environnement de type circalittoral confiné, riche en pyrite et en matière organique. Ces dépôts progradent du Nord vers le Sud (Fig. II.14a), ce qui génère un léger diachronisme de ces dépôts entre la partie nord (en avance dans le dépôt) et la partie sud (en retard dans l'arrivée des dépôts). De plus, on constate un épaissement du Sud vers le Nord, voire vers le Nord-Est (Cuihlé et Bruneton, 2003).

- **La séquence médiane** (Callovien supérieur à Oxfordien inférieur: zones à Athleta, Lamberti, Mariae et Cordatum) est la plus épaisse des séquences. Elle débute avec un apport d'argilites (zones à Athleta et Lamberti) plus condensé qu'au Callovien moyen, où s'intercalent des lits biomicritiques à lamellibrances pélagiques soulignant une bathymétrie d'environ 70 mètres (Robin, 2003). Ces couches se distinguent bien, en diagraphies de forages par une baisse du gamma-ray. Ce Callovien supérieur correspondrait à une réduction des apports terrigènes sur le site d'étude, induite par une transgression marine qui pousse les dépôts vers un domaine plus proximal (Norris and Hallam, 1995), voire par des courants trop forts qui empêchent leur dépôt (Rais et al., 2005). Ce Callovien supérieur calcaire à oolites ferrugineuses dans beaucoup de secteurs, sert de repère inférieur oolitique (R.I.O.) pour les pétroliers, et est daté par ses nombreuses ammonites.

Suit un apport progressivement plus argilo-silteux homogène et sans figure sédimentaire (zone à Mariae puis à Cordatum) à l'exception de bioturbations pyritisées liées à une augmentation de la tranche d'eau, avec une progradation en "onlap" du Nord-Est vers le Sud-Ouest (Fig. II.14b). C'est ici que l'on rencontre le maximum d'argilosité de toute la formation (60-65% d'argile et 18% de carbonate au maximum). La surface d'inondation maximale (SI), confondue avec celle d'ordre deux, est suivie par une phase d'aggradation sous une tranche d'eau de 100 à 150 m. Un changement dans la population des minéraux argileux apparaît au même moment puisqu'on passe d'argiles interstratifiées I/S R1 à des RO, et la kaolinite disparaît. La bathymétrie augmente de l'Est vers l'Ouest dans un environnement marin ouvert légèrement réducteur.

- **La séquence supérieure** (fin de l'Oxfordien inférieur à Oxfordien moyen: zone Plicatilis) est celle où le niveau de la mer s'élève à nouveau et amène des apports, de plus en plus nombreux, argilo-silteux intercalés de lits carbonatés, équivalents des marnes des Eparges, qui caractérisent un environnement de dépôt marin moins profond que la séquence précédente. L'épaississement, inverse des séquences antérieures, va du Sud-Ouest au Nord-Est, comme l'indique la carte des isopaques de cette séquence (Fig. II.14c). En fin de séquence, on observe une surface de non-conformité (toit de la formation hôte) qui vient tronquer les dépôts terrigènes par la mise en place d'une plateforme carbonatée (zone à Transversarium), liée au retour vers un climat plus chaud et aride.



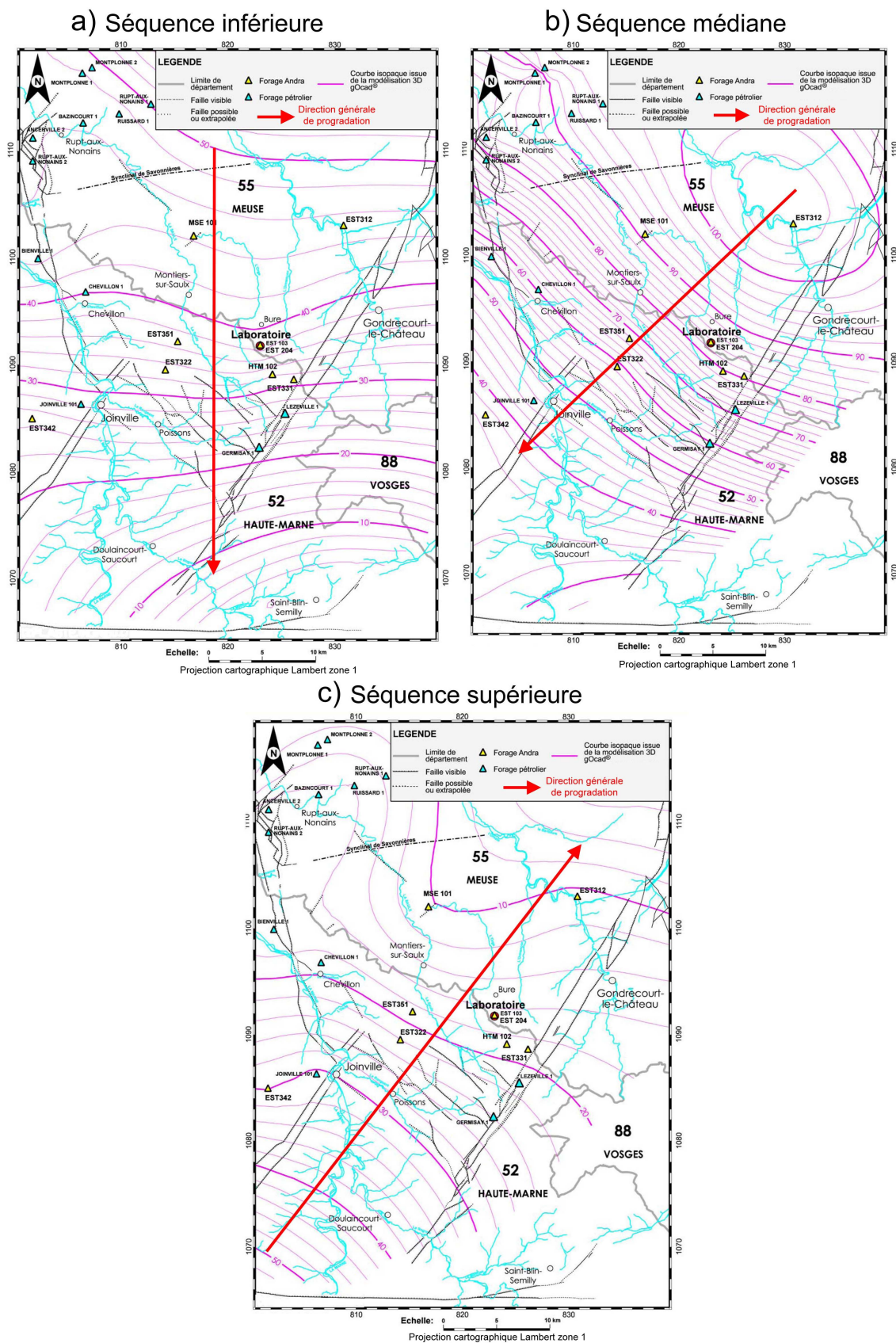


Figure II.14: Isopaches des couches du Callovo-Oxfordien. a) Séquence inférieure ou Callovien moyen; b) séquence médiane ou Callovien supérieur à Oxfordien inférieur; c) séquence supérieure ou Oxfordien moyen (Andra, 2005).

Ainsi, l'épisode argileux du Callovo-Oxfordien correspond à une phase de haut niveau marin relatif appartenant à un grand cycle eustatique dans un contexte de sédimentation calme où les variations latérales sont faibles et qui présente une grande extension géographique. Par rapport au secteur d'étude, l'origine des apports se situe au Nord. Les séquences inférieures et médianes s'épaississent du Sud vers le Nord. C'est le cas inverse pour la séquence supérieure qui est tronquée à son sommet par l'installation de la plateforme carbonatée de l'Oxfordien. Ces séquences permettent de retracer les variations du niveau marin et ses différents cycles (Fig. II.15).

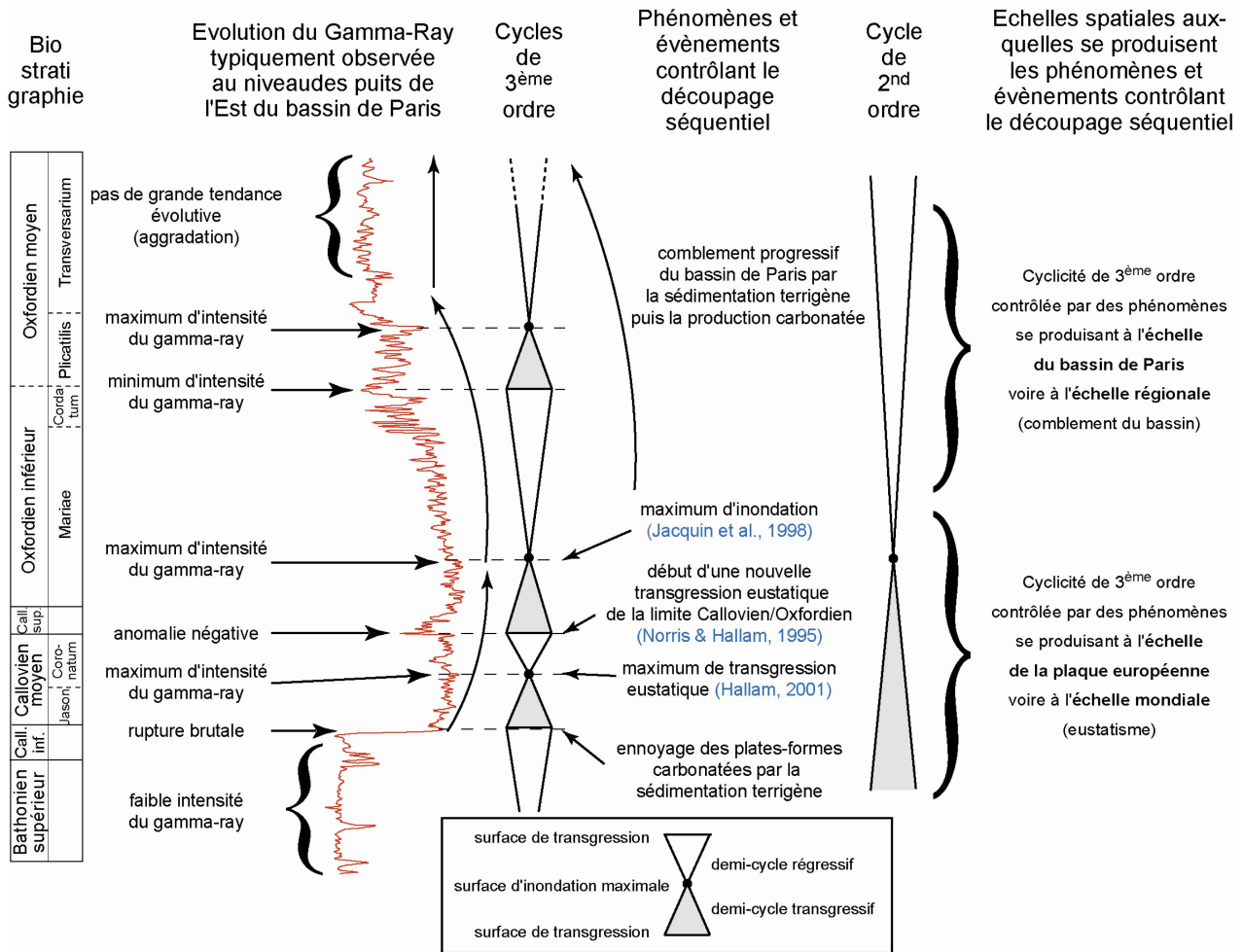


Figure II.15: Découpage séquentiel de second et troisième ordres proposé pour les argilites callovo-oxfordiennes du bassin de Paris et relations avec l'évolution du gamma-ray associé aux événements géologiques ayant influencé cette cyclicité (Hautevelle, 2006).

2.2.4. La minéralogie du Callovo-Oxfordien du secteur d'étude

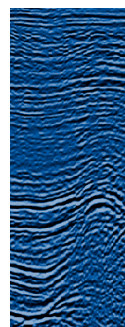
Le Callovo-Oxfordien est constitué de 3 phases minérales majeures, les argiles, la calcite et le quartz (silt). Les phases secondaires sont principalement la dolomite, les feldspaths, la pyrite et des oxydes de fer. La concentration en calcite et en quartz est liée aux séquences d'ordre 3 lors des baisses du niveau marin relatif, où leur concentration peut atteindre 40 à 45%. Au maximum d'inondation, le taux d'argile atteint 60%, sinon il est de 40 à 60%. En base de séquence, le taux de calcite peut atteindre 98%. La diminution du taux d'argile après le maximum d'inondation (séquence médiane) semble liée à l'augmentation de la fraction silico-clastique (quartz essentiellement) et de carbonates. La séquence inférieure (Callovien inférieur et moyen) est par ailleurs, la plus silteuse. Son taux de silt semble augmenter en se déplaçant vers le Nord du secteur.

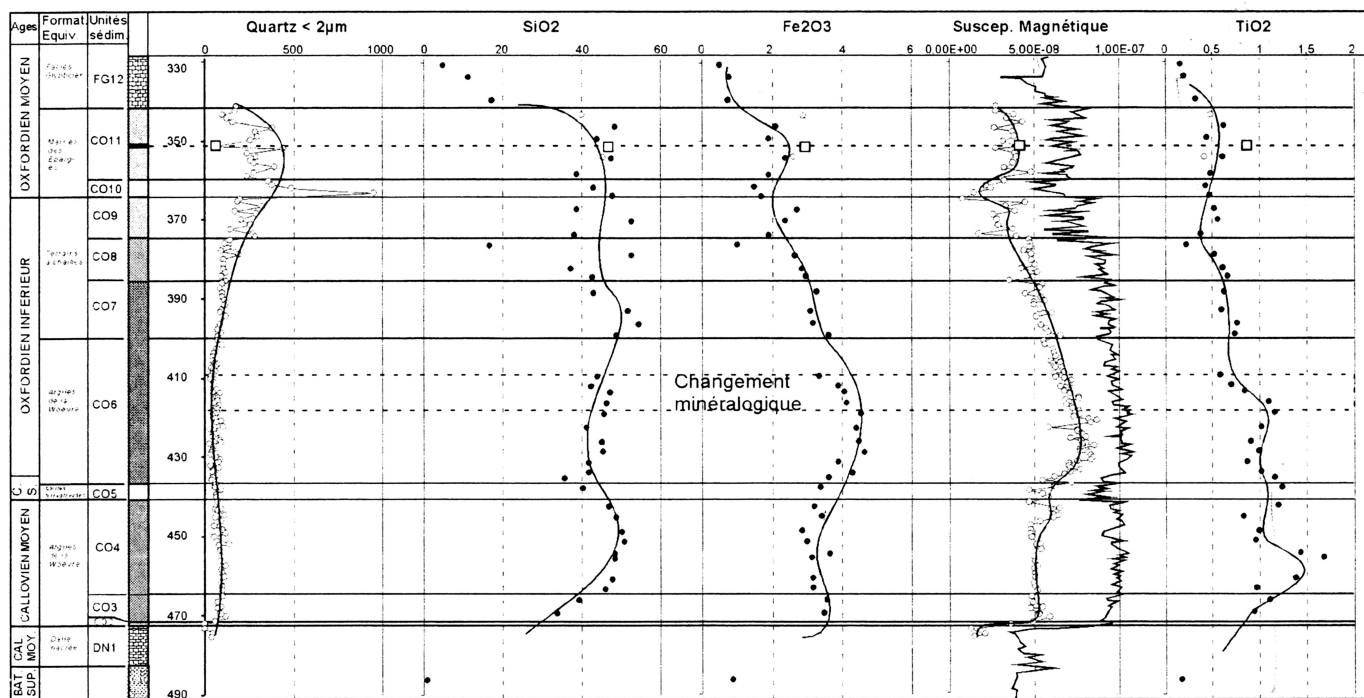
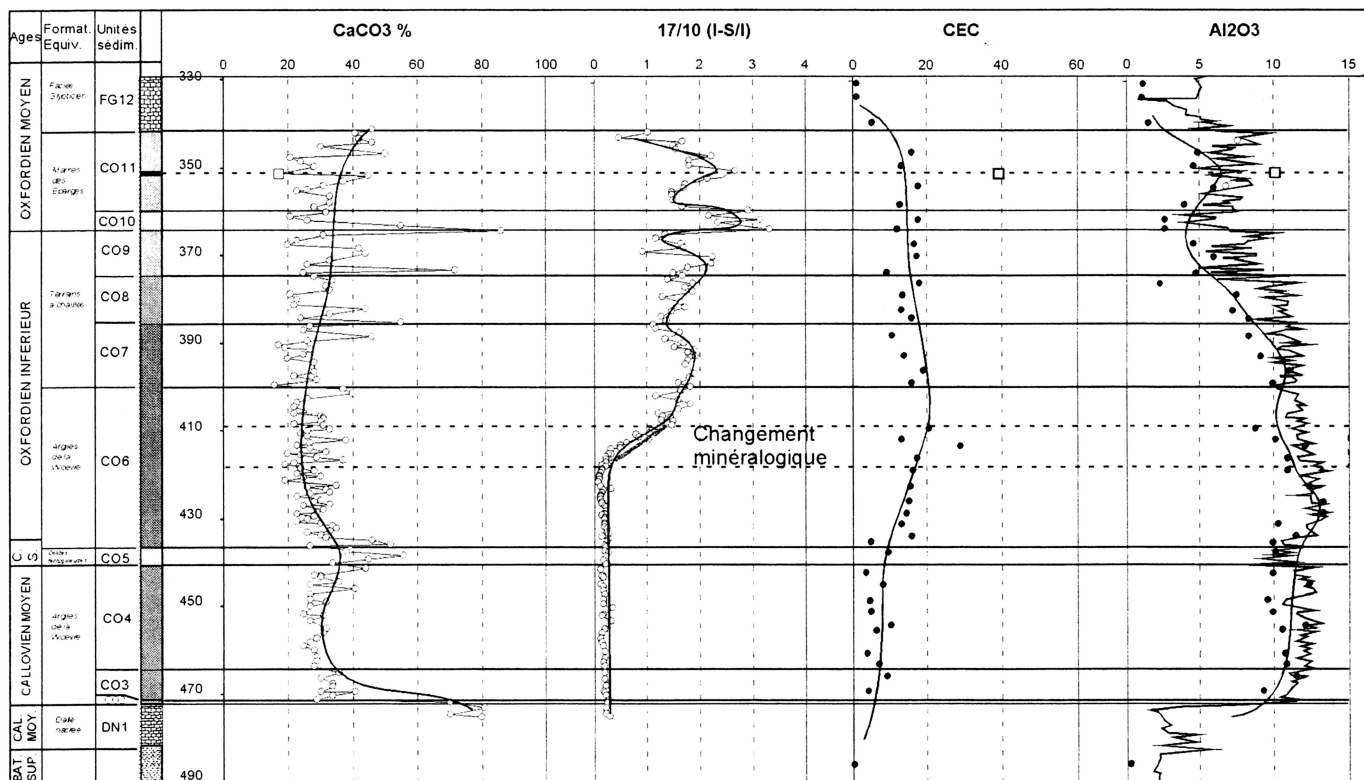
Les changements minéralogiques des cortèges argilo-carbonatés ont été mis en évidence dans le Callovo-Oxfordien par Rousset (2002) et Pellenard (2003) et (in Andra, 2005); l'origine sédimentaire des changements dans la minéralogie des argiles semble donc la plus probable. Les travaux les plus récents confirment cette origine sédimentaire. Les argiles interstratifiées I/S de type R1, avec un taux de smectite de 20 à 40%, se rencontrent dans la moitié inférieure du Callovo-Oxfordien, associées aux kaolinites. Une transition d'une dizaine de mètres pendant l'aggradation de haut niveau marin de la séquence médiane permet un passage à des argiles I/S de type R0 ayant un taux de smectite de 50 à 70% et associées à la disparition de la kaolinite dans la moitié supérieure du Callovo-Oxfordien. Ces changements de la minéralogie des argiles sont présentes dans l'ensemble du secteur d'étude: dans le forage MSE101 (au Nord du secteur; Fig. II.11 et II.14) présente dans l'Oxfordien inférieur argileux; dans le forage EST342 (au Sud-Ouest du secteur) présente dans le Callovien moyen mais aussi dans l'Oxfordien inférieur argileux. La simple ou double présence de ces transitions des minéraux argileux selon les secteurs renforcent l'idée d'une origine sédimentaire et non diagénétique car, sinon, elle affecterait de la même façon l'ensemble du Callovo-Oxfordien.

L'apport de silt, reflété par le quartz principalement, est anti-corrélé avec le taux de carbonate (Gaucher et al., 2004). Cet apport est plus marqué pour la période allant du Callovien moyen à la fin de l'Oxfordien inférieur. Observé au MEB et sous loupe binoculaire sur fraction séparée, le quartz est souvent arrondi dans des tailles allant de 40 à 100 μm . Ces caractères suggèrent que les grains de quartz ont une origine éolienne (transportés par les vents) avant d'être repris par des courants marins. Des grains de quartz encore plus petits (5 μm) et aux formes cristallines nettes ont aussi été observés, pouvant suggérer une origine diagénétique mais de si petits grains sont parfois impossible à é mousser malgré de long transport.

Les phases carbonatées représentent entre 22% et 37% des argilites du Callovo-Oxfordien. Les zones les plus riches (27%-37%) appartiennent aux séquences inférieures et supérieures et les moins riches (22%-30%) appartiennent à la séquence médiane. Dans ces roches, la dolomite contient une proportion non négligeable de fer, et le taux de pyrite excède rarement 1 à 2%, la pyrite étant particulièrement bien représentée dans la séquence médiane, la plus riche en argile. Le rendement des extraits de la matière organique est plus abondant à la base du Callovo-Oxfordien, juste au dessus de la dalle nacrée, où il représente 0,35 mg/g de roche, décroît jusqu'au sommet du Callovien (0,05 mg/g) puis conserve cette teneur au-delà, pendant l'Oxfordien. Les zones situées plus au Sud du Laboratoire sont en moyenne moins importantes (0,25 mg/g) au dessus de la dalle nacrée, avec une diminution brutale à l'entrée de l'Oxfordien, pour atteindre les mêmes valeurs que dans les autres secteurs à la fin de l'Oxfordien moyen (0,05 mg/g). Dans l'ensemble du Callovo-Oxfordien, la concentration en matière organique (Total Organic Carbon) est inférieure à 0,6%.

La teneur en fer augmente progressivement jusqu'à l'épisode d'inondation maximum de l'Oxfordien inférieur avant de diminuer à nouveau. L'outil "magnétisme", sensible à la teneur en fer et à sa variation dans la formation sera présenté au chapitre III, puis utilisé au chapitre IV, où l'on tentera de caractériser la minéralogie magnétique et son évolution. Le seul "paramètre" magnétique utilisé à ce jour dans ces argilites (Pellenard, 2003; Huret, 2006) a été la susceptibilité magnétique qui mesure la capacité des minéraux à s'aimanter (Chapitre III.3.2.1 & 3.3.1). Les variations de la susceptibilité (Fig. II.16) soulignent les variations lithologiques en reflétant essentiellement la quantité de minéraux argileux faiblement ferrifères et les carbonates dont leur présence est observée par les courbes gamma-ray et les concentrations en Al. Ces variations sont anti-corrélées avec celle de la calcimétrie (rapports ERM, 1995). La courbe de Fe_2O_3 (Fig. II.16) oscille de 0,5 à 4,5%, augmente jusqu'à l'unité Co6 puis diminue progressivement jusqu'à la plateforme oxfordienne carbonatée marquée par l'unité FG12, à l'exception de l'unité Co11 (équivalent des marnes des éparges) qui augmente légèrement. Cette augmentation peut souligner la présence de pyrite, d'oxydes et hydroxydes de fer (hématite, goethite), d'argiles (illites, smectites), et d'autres silicates contenant du fer (chlorites, autres micas, glauconie), et en moindre quantité des carbonates contenant du fer comme la dolomite et l'ankérite. L'unité Co6 est riche en pyrite framboïdale dispersée dans la matrice, dans des terriers, et dans des tests d'organismes et fossiles.





- Données géochimiques ou minéralogiques propres
 - ◻ Données géochimiques ou minéralogiques relatives à la bentonite
 - Données géochimiques ou minéralogiques ERM (1995)
- Signal diagraphie : gamma ray

Figure II.16: Comparaison des évolutions minéralogiques, géochimiques et de la susceptibilité magnétique dans le Callovo-Oxfordien du forage HTM102 (Pellenard, 2003).

2.2.5. Origine des apports minéralogiques du Callovo-Oxfordien

Les minéraux des roches sédimentaires que nous étudions peuvent avoir deux origines: héritée (ou détritique) apportée par les courants, ou néoformée (i.e. origine diagénétique) par réactions chimiques *in-situ* avec les fluides de la roche.

2.2.5.1. Phases minérales héritées

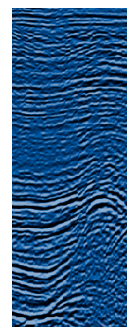
Les principales phases sont le quartz et les argiles:

- Le quartz est représenté par des grains de taille $< 30 \mu\text{m}$, arrondis, parfois corrodés (§.2.2.4.). Leur origine détritique est confortée par les données de $\delta^{18}\text{O}$ (Bouchet et Rassineux, 1996; Pellenard, 2003). Les datations sur les minéraux argileux associés au quartz semblent montrer qu'ils proviennent des massifs hercyniens émergés tels que Londres-Brabant.

- Les argiles I/S ont une origine détritique et non pas diagénétique. Or, la formation n'a pas connu de température supérieure à une cinquantaine de degrés (Landais et Elie, 1999). Ceci indique que la formation n'a pas été enfouie à plus de $\sim 850 \text{ m}$ (Elie, 2000). Les illites et les chlorites sont primaires et résultent, soit de l'érosion des continents soit de dépôts argileux antérieurs, soit d'une forte diagenèse après enfouissement important par subsidence et fort taux de sédimentation. Les travaux de Landais et Elie (1999) montrent que le taux de sédimentation et l'enfouissement a été très faible et excluent donc toutes formations minéralogiques par diagenèse. Les données sur la matière organique (Ayt Ougougdal et al., 1996) renforcent l'idée d'un apport sédimentaire. Ces minéraux sont ensuite transportés par les courants marins.

- La disparition de la kaolinite dans la moitié supérieure du Callovo-Oxfordien (Fig. II.17) est synchrone à une aridification plus marquée du climat de l'époque, ce qui est conforme aux autres résultats climatiques (Hautevelle et al., 2004).

- La présence simultanée d'illite et de kaolinite au Callovien (Fig. II.17) indique que les sources sont plutôt le massif Londres-Brabant et le massif Armoricaïn, en relation avec la présence de ces minéraux dans ces massifs, à cette époque (Pellenard, 2003). A l'Oxfordien inférieur, la kaolinite peut aussi provenir du Massif Central alors probablement émergé et susceptible de fournir ce minéral. La datation de ces illites (Permien) (Rousset, 2002) montre qu'elles sont d'origine détritique. Les argiles sont des indicateurs du milieu de dépôt car si les grains de kaolinite ou d'illite sont de grande taille (plusieurs μm) alors la sédimentation est plutôt de type plateforme interne. Si les smectites ou les interstratifiés (I/S) sont présents, leur petite taille implique que la sédimentation s'est effectuée plus au large.



- L'origine des smectites est plus discutée. Elles se forment généralement sur le sol des régions sous climat chaud et à drainage faible. D'après Pellenard (1999 et 2003), elles semblent d'origine lointaine telles que les marges de l'océan Atlantique du Nord en cours d'ouverture, où les smectites se seraient cantonnées d'abord au Nord-Nord-Ouest du bassin (zone la plus subsidente) avant d'arriver sur le secteur d'étude. Le caractère détritique de ces argiles est démontré par leur datation K-Ar qui donne des âges permotriasique (anté-Callovien) entre 206 et 275 Ma (Rousset, 2002).

- La chlorite semble issue du massif de Londres-Brabant pour la partie nord du bassin parisien, et du massif Bohémien pour la partie nord-est (Andra, 2005).

Ainsi, la distribution des argiles dépend de nombreux facteurs de sédimentation et génétiques: paléogéographie, éloignement des rivages, type de sédimentation, crises tectoniques... Outre ces données sur les minéraux détritiques, la matière organique fournit des informations sur le milieu de dépôt, la paléogéographie et la diagenèse. Si sa nature semble identique pendant tout le Callovo-Oxfordien, sa production diffère entre le Callovien et l'Oxfordien. La contribution des organismes sources de la matière organique est plus "marine" lors des transgressions marines alors qu'elle est plus "continentale" pendant les phases de haut niveau marin. Le Callovien, qui semble plus "marin" que l'Oxfordien, se démarque surtout par un environnement anoxique, d'après la nature de la matière organique, lors des premiers dépôts marins (Hauteville et al., 2005), dans un contexte climatique froid et de plus en plus aride. Ces données soulignent par ailleurs, que l'Oxfordien inférieur correspondait à une période de sécheresse sur les continents environnants, modifiant le type de végétation et donc le type d'apport de matière organique dans les sédiments.

2.2.5.2. Phases minérales diagénétiques

Les minéraux néoformés sont minoritaires, la température du milieu n'ayant jamais excédé ~ 50°C sur une durée de plus de 10 Ma (Elie, 2000), ce qui correspond à une profondeur d'enfouissement d'environ 850m. Outre les cristaux de calcite qui peuvent abonder, ces conditions n'ont permis la formation que de petits cristaux authigènes en faible proportion. Certaines kaolinites dites "vermiculaires", ou en accordéon, ainsi que de fines particules d'illite ou d'interstratifiés de taille inférieure à 0,02 µm semblent souligner ces néoformations minérales.

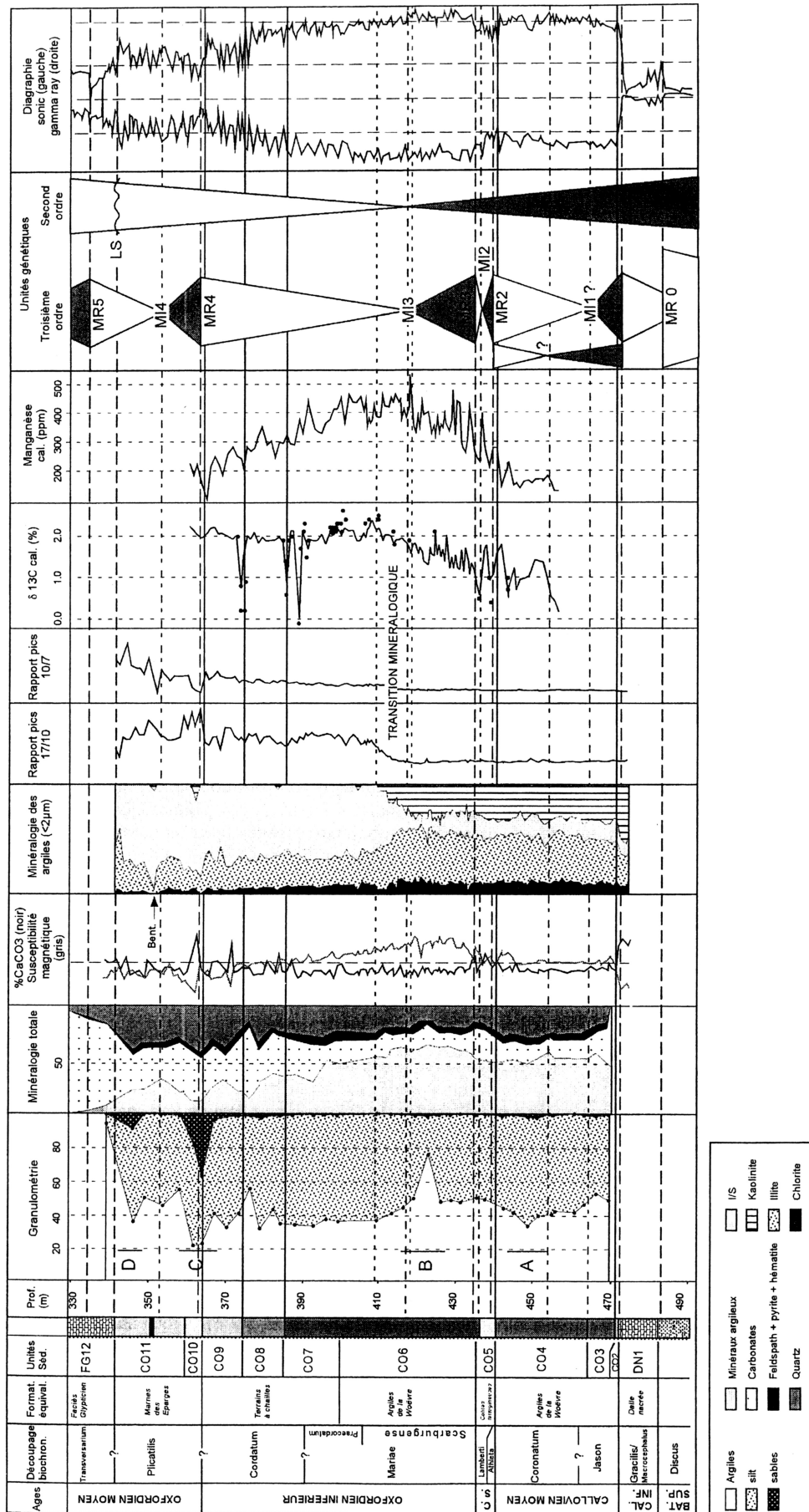
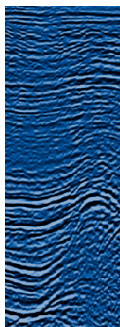


Figure II.17: Exemple d'interprétation séquentielle du forage HTM102 à partir des données diagraphiques, minéralogiques et géochimiques. Les données de diagraphie et minéralogie totale proviennent du rapport Andra B RP OANT 95 018/A ANTEA (1995); les données géochimiques sur la phase carbonatée des rapports Andra DRP OARM 01-004/1 et DRP OARM 01-005/1 (ARMINES, 2001; les points noirs correspondent à des reprises d'analyse réalisées lors des travaux de fin d'étude).



2.3. Aspects pétrophysiques de la formation sur le secteur d'étude

2.3.1. Les fondamentaux concernant l'espace poreux

Les assemblages minéralogiques et les interactions fluides-roches, sont des paramètres susceptibles de contrôler l'accessibilité aux pores de différentes tailles qui existent entre cristaux. La géométrie de l'espace poreux est liée à la morphologie des assemblages minéralogiques (formes, tailles, arrangements), à leur organisation dans l'espace, qui est fonction du taux de compaction, des anisotropies, et des chemins de percolation et de la proportion entre les cristaux et la matrice argileuse. Dans les argilites que nous étudions, les principaux minéraux sont, on l'a vu, le quartz (\pm chlorite,...) et la calcite (\pm ankérite,...) liés par une matrice très fine d'argiles plus ou moins gonflantes, le tout associé à de la matière organique et à des sulfures. Les techniques d'imagerie (microscopie optique, MEB, SEM...) permettent d'évaluer leur abondance et leur taille aux échelles centimétrique à nanométrique (rapport ERM, 2003). Ces données permettent de proposer, au premier ordre, un modèle d'organisation de la porosité et des propriétés de transfert des argilites. Ces propriétés sont fondamentales à connaître pour évaluer les capacités de confinement et les propriétés thermo-hydro-mécaniques de la couche.

2.3.2. Organisation des particules sédimentaires

L'orientation des minéraux est surtout liée à la compaction mécanique due au poids de la pile sédimentaire sus-jacente, qui augmente pendant l'enfouissement, et à l'expulsion de l'eau pendant la compaction. Les particules fines, micrométriques à nanométriques, telles que les bioclastes ou les argiles se placent horizontalement, parallèlement à la stratification et s'organisent autour des grains détritiques les plus gros, tels que le quartz (quelques μm à 100 μm), les cristaux de calcite ($>200 \mu\text{m}$) ou les bioclastes calcitiques. Cette organisation permet de conserver une porosité intergranulaire. Dans le détail, la distribution des minéraux est fonction de leur proportion et de leur origine. Par exemple, alors que les minéraux détritiques se répartissent de manière homogène dans la matrice argileuse, les bioclastes se regroupent en amas ou en lits plus ou moins denses.

2.3.3. Mesures de la porosité et de sa variabilité

La porosité, ou espaces vides non occupés par les minéraux, se mesure généralement en laboratoire via des techniques d'imprégnation sous pression, à l'aide de divers fluides qui accèdent à différentes échelles du réseau poreux (Sing et al., 1985): mercure, hélium, azote, pétrole (Fig. II.18), et dans ce mémoire, par des ferrofluides (Chapitre 5). La mesure du volume imprégné, ou de la susceptibilité magnétique de l'échantillon après imprégnation dans le cas des ferrofluides, permet d'accéder au volume poreux impliqué dans les transferts diffusifs pour les pores les plus petits et éventuellement convectifs pour les pores de suffisamment grande taille.

Les méthodes effectuées directement en forage, soit par diagraphie neutron (NPHI) pour les niveaux pauvres en argiles, soit par résonance magnétique nucléaire (CMR), permettent de mesurer la quantité d'eau contenue dans le sédiment et sa variabilité à l'échelle de la formation. Elles fournissent une mesure de la porosité in situ. Les méthodes de laboratoire sur échantillons par porosimétrie, en affinant la mesure d'imprégnation en fonction de la pression d'injection et du type de fluide injecté, aident à la compréhension structurale de la porosité et, *in fine*, fournissent les paramètres indispensables aux modèles de réseau poreux.

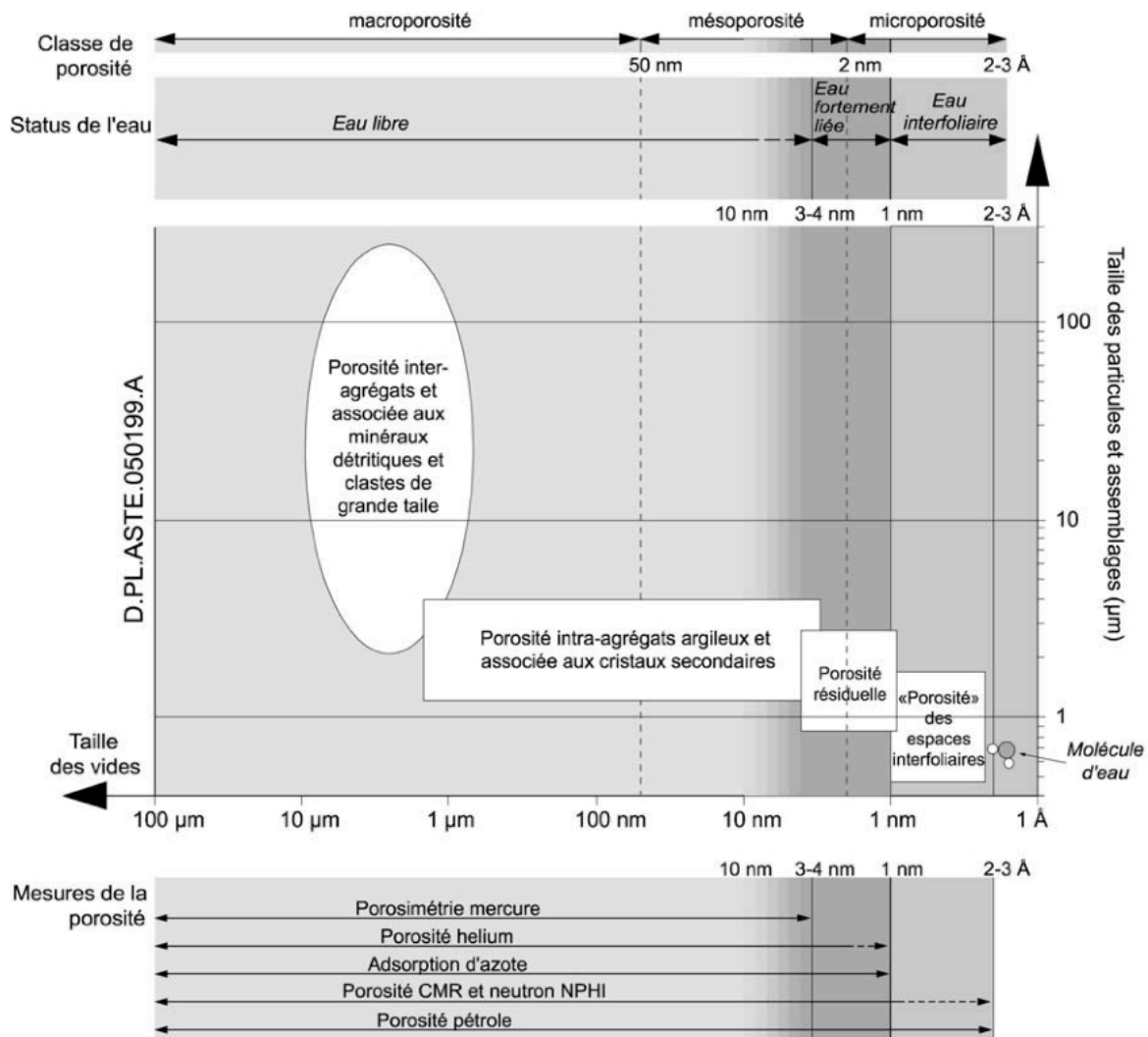
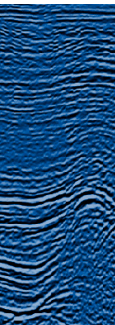


Figure II.18: Echelle d'accessibilité à des pores selon les techniques utilisées, et relations entre taille des vides et taille des particules (document Andra, 2005).



La mesure en laboratoire de la porosité, effectuée par porosimétrie au mercure (macro- et méso-porosité) et par adsorption à l'azote (micro-porosité), varie de $\sim 13\%$ pour les niveaux les plus carbonatés à $\sim 19,5\%$ pour les niveaux les plus argileux. On retrouve ces valeurs dans les mesures en forage pour l'argilite du Callovo-Oxfordien. Cette variabilité verticale de la porosité, surtout liée à la proportion de minéraux argileux, permet de retrouver les 3 grands cycles de sédimentation issus des variations du niveau marin. Dans les parties homogènes les plus argileuses, la porosité moyenne totale peut atteindre $20 \pm 1\%$ dont $\sim 10\%$ de macropores, $\sim 86\%$ de mésopores et $\sim 4\%$ de micropores. Les parties où la porosité est la plus variable se situent dans les siltites carbonatées ou argilo-carbonatées. Les cartes de porosité obtenues par autoradiographie assistée par traitement d'images (Sammartino et al., 2002) montrent clairement les hétérogénéités de dimension centimétrique pouvant influencer les mesures de laboratoire pour déterminer les coefficients de diffusion (Fig. II.19). Les variabilités latérales sont faibles, ce qui traduit la faible variabilité minéralogique latérale comme le confirment les diagraphies des divers forages.

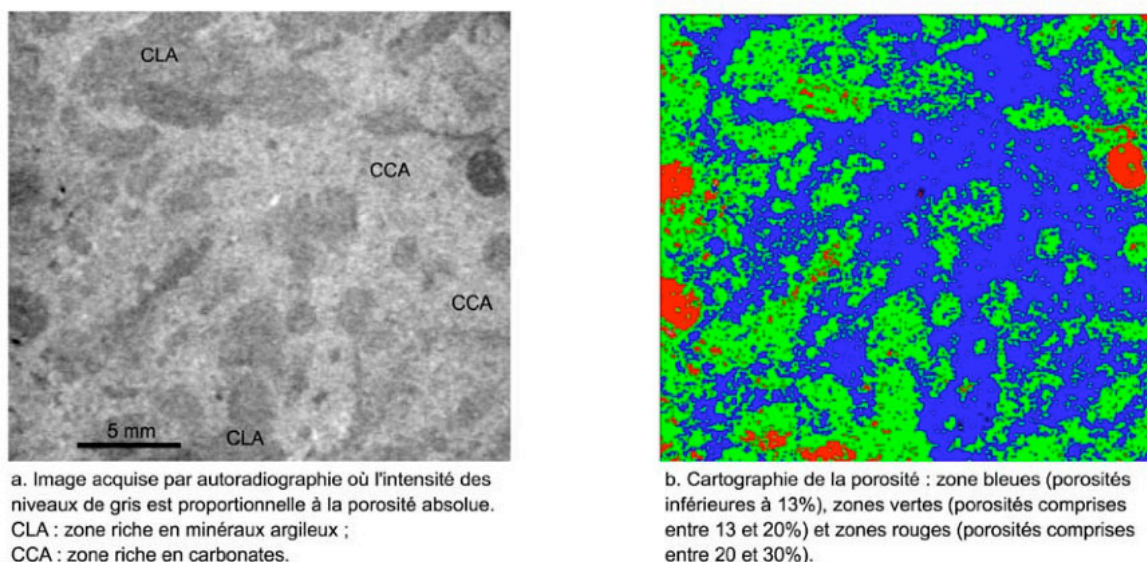


Figure II.19: Cartographie de la porosité par autoradiographie. Forage HTM 102-Faciès C2c (Sammartino et al., 2002).

2.3.4. Modélisation de la porosité

La porosité est influencée par la présence de l'eau qui peut circuler, plus ou moins facilement selon son état dans la roche. Connaître la quantité d'eau, son état et sa répartition est donc important pour interpréter les résultats de porosimétrie en laboratoire. L'eau se présente sous quatre formes différentes (Revil and Glover, 1998): (1) eau structurale, contenue dans le réseau des minéraux; (2) eau interfoliaire, entre les feuillets des minéraux argileux, notamment les argiles gonflantes; (3) eau adsorbée en surface des particules liée aux forces de Van der Waals et dipôle-dipôle, qui attirent les molécules d'eau contre la surface des minéraux et qui représente une couche d'eau épaisse d'environ 1 nm. Les argiles sont largement sujettes à ce type de forces; enfin (4) eau libre, présente surtout dans les macropores, et qui n'est soumise à aucune force à l'exception des effets capillaires de pores d'accès d'un pore à un autre, et qui peut donc librement circuler dans la roche.

Les mesures couplées d'injection au mercure (méso- et macro-porosité) et d'adsorption à l'azote (micro-porosité) permettent d'estimer la porosité occupée par l'eau. Le volume d'eau ou somme des 4 états possibles, contenue dans les pores représente ~ 7% en moyenne du volume de l'échantillon dans les niveaux les plus argileux. Ces mesures ont montré aussi que l'eau libre ne semble pas jouer un rôle important dans la porosité et n'entre donc pas en jeu dans les transports convectifs. L'eau est surtout contenue dans les espaces interfoliaires des argiles (i.e. eau interfoliaire).

Les mesures de porosité au mercure et à l'azote, associées aux observations au MEB, suffisent à "scanner" l'ensemble du spectre de la porosité à toutes les échelles et permet de proposer un modèle de distribution des tailles de pores (Fig. II.20) pouvant conduire à une représentation conceptuelle de la porosité des argilites (Fig. II.21).

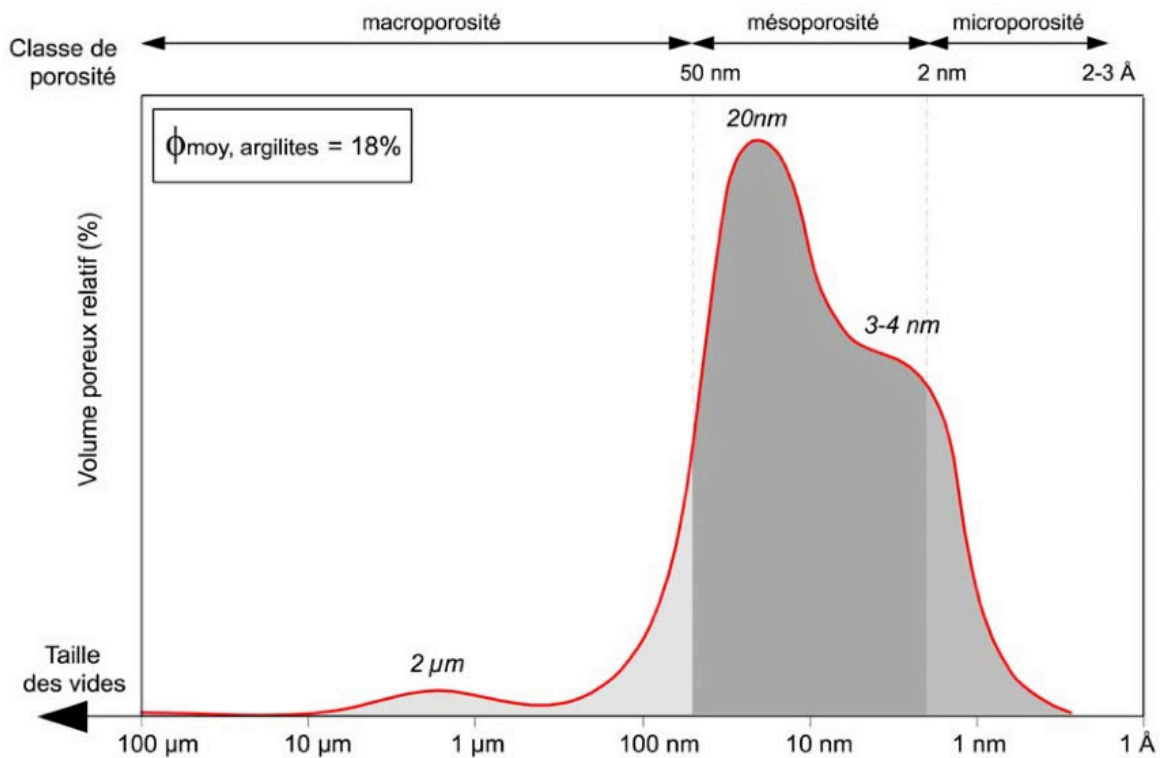
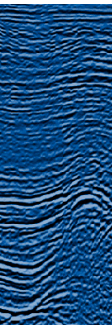


Figure II.20: Modèle de distribution des diamètres des pores proposés pour les argilites du Callovo-Oxfordien (document Andra, 2005; www.andra.fr).



Dans ce modèle (Fig. II.21), deux types de porosité sont distincts:

- porosité à l'interface entre la matrice argileuse et les autres minéraux (quartz et calcite), portée par des pores de taille submicrométrique, et qui représente environ 10% de la porosité totale connectée (i.e. macroporosité);
- porosité de la matrice argileuse elle-même, avec des tailles de pores de quelques dizaines de nanomètres à quelques micromètres; cette porosité représente 90% de la porosité totale connectée par le biais de la mésoporosité.

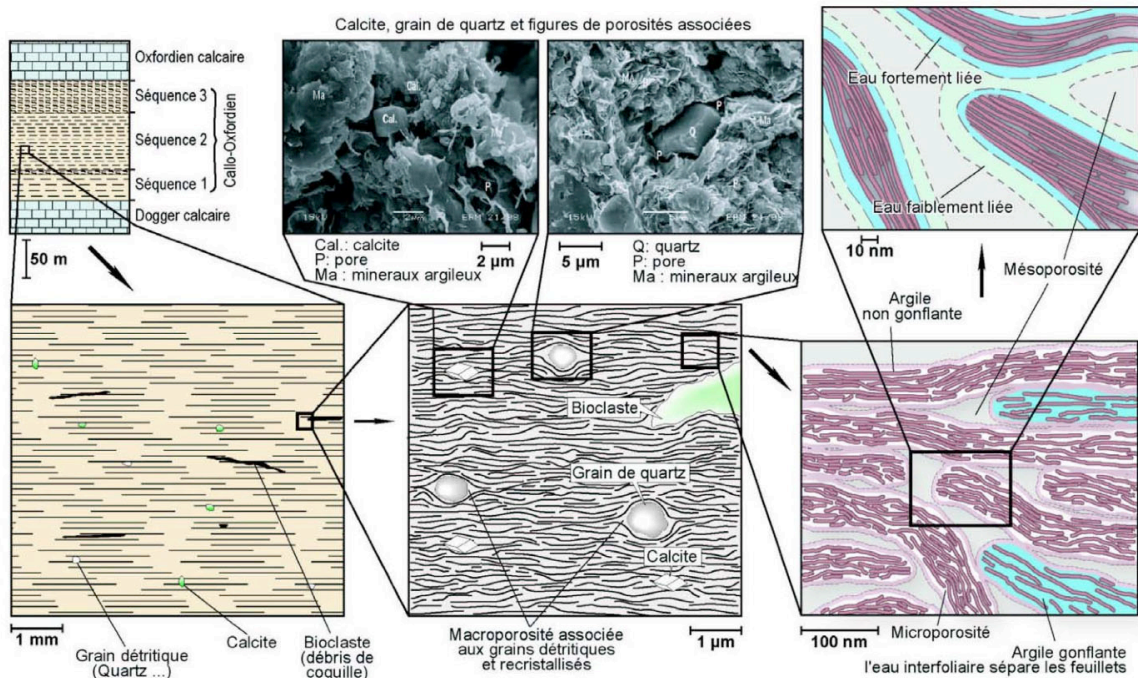


Figure II.21: Modèle conceptuel de représentation de la porosité dans les argilites (Andra, 2005).

Parmi les échantillons analysés, on observe une diminution de la macroporosité au profit de la mésoporosité dans les niveaux les plus argileux, associée à une diminution de la taille des pores et des connexions porales. Elles sont le reflet d'une diminution de la teneur en minéraux détritiques de grande taille (quartz ± chlorite, glauconie...) et en calcite (bioclastes, cristaux secondaires).

2.3.5. Perméabilité et hydrodynamique des argilites du Callovo-Oxfordien

Les données acquises in situ sur les débits de production d'eau par des tests hydrauliques, par exemple par les courbes de remontée de pression imposée, montrent une plage de valeurs comprises entre 10^{-14} et 10^{-12} m/s pour la conductivité hydraulique des argilites. La conductivité hydraulique mesurée en laboratoire sur carotte (Fig. II.22) étant particulièrement faible est donc difficile à mesurer. Les effets d'échelle peuvent avoir une grande importance mais dans ces argilites cet effet reste négligeable (Delay et al., à paraître). Les quelques mesures de conductivité hydraulique sur carotte proviennent de différents dispositifs de saturation par l'eau dans une chambre hermétique dont le taux hygrométrique est imposé. En intégrant la connaissance de l'évolution de la diffusivité des argilites (Eurogeomat, 1995; Robinet and Rhattas, 1995; Laego, 2003), c'est-à-dire la vitesse de transfert des fluides aux travers de la porosité, par transport de type diffusif (i.e. le principal transport dans ces roches), les dispositifs expérimentaux sur carottes peuvent permettre de retrouver les mêmes valeurs que celles mesurées en forage. Les valeurs oscillent entre 1.10^{-14} et $5,5.10^{-13}$ m/s (Fig. II.22) et varient peu avec la position dans la formation d'argilite du Callovo-Oxfordien.

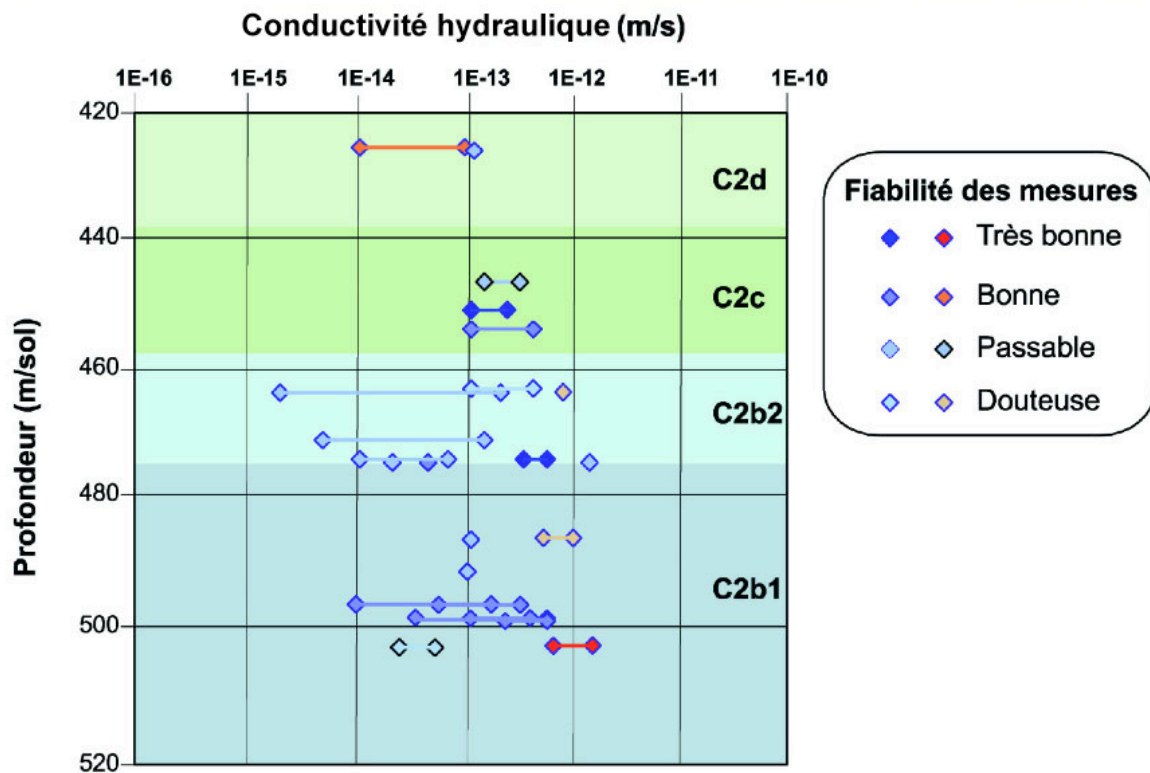


Figure II.22: Evolution avec la profondeur des mesures, sur échantillons en laboratoire, de la conductivité hydraulique (m/s) et qualité des mesures (Laego, 2005).

Des tests d'anisotropie de conductivité hydraulique sur deux forages (EST205 et EST207) par le Laboratoire Environnement, Géomécanique et Ouvrages (LAEGO) (Koriche, 2004; Laego, 2005) montrent des valeurs identiques ou, au plus, supérieures d'un ordre de grandeur dans le plan du litage (horizontal) que selon la verticale. Ces valeurs sont généralement comprises entre 10^{-14} et 10^{-12} m/s dans le plan horizontal (Tableau II.1).

Forage	Profondeur du prélèvement (m/sol)	Conductivité hydraulique verticale (m/s)	Conductivité hydraulique horizontale (m/s)
EST205	481,02 - 481,33	4 à $5 \cdot 10^{-13}$	5 à $6 \cdot 10^{-13}$
EST205	502,42 - 502,74	2 à $4 \cdot 10^{-14}$	2 à $4 \cdot 10^{-13}$
EST207	469,03 - 469,32	0,8 à $2 \cdot 10^{-13}$	1 à $3 \cdot 10^{-13}$

Tableau II.1: Mesures des anisotropies de la conductivité hydraulique (m/s) entre deux forages (EST205 et 207; Laego, 2005).

En intégrant toutes les méthodes appliquées soit au laboratoire soit en forage, il ressort que la conductivité hydraulique moyenne de la formation du Callovo-Oxfordien est comprise entre $5 \cdot 10^{-14}$ et $5 \cdot 10^{-13}$ m/s avec un faible effet d'échelle. On note que les diaclases et/ou les fentes de tension rencontrées dans la formation ne semblent de pas influencer la conductivité hydraulique. Ceci souligne l'effet de colmatage (sealing) des argilites, probablement via des mécanismes de dissolution-recristallisation par la calcite et la célestine, notamment. Ces aspects, intégrés aux mesures de pression des fluides et aux modèles conceptuels des couches composant la formation, permettent de proposer un schéma d'écoulement (Fig. II.23) à la verticale du site d'étude.

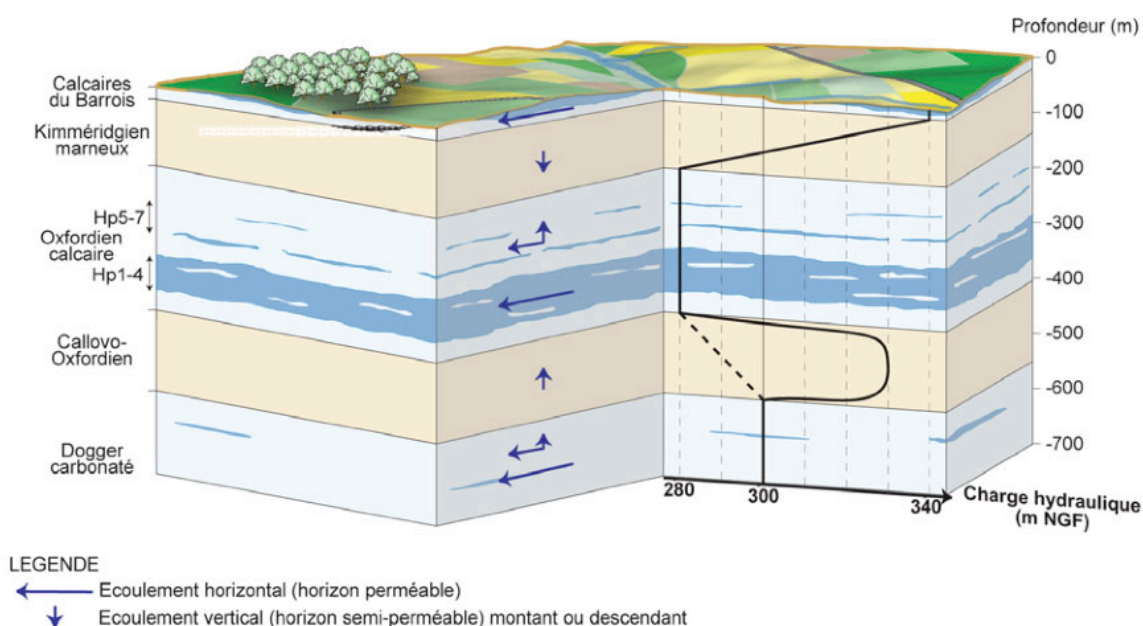


Figure II.23: Modèle d'écoulement des fluides dans les différentes couches du secteur d'étude, du Dogger aux calcaires du Barrois (Andra, 2005).

Chapitre 3

Principes et méthodes en magnétisme des roches



Chapitre 3 – principes et méthodes en magnétisme des roches

On se propose de présenter les notions utiles à connaître en magnétisme et les méthodes utilisées pour tenter (dans le chapitre 4) de caractériser la minéralogie magnétique, leur organisation, les enregistrements climatiques et eustatiques du passé...

3.1. Base du géomagnétisme terrestre et du paléomagnétisme

Depuis l'invention du compas par les Chinois, le magnétisme a fasciné l'humanité par ses effets invisibles à l'oeil. Peregrinus (1269) a été le premier européen à se servir du compas magnétique pour la navigation en mer. Le principe repose sur la suspension d'un barreau aimanté qui tourne jusqu'à s'aligner avec les lignes de force du champ magnétique (Fig. III.1a) joignant le pôle Nord (pôle entrant) au pôle Sud (pôle sortant). Le concept même de "lignes de force" a été inventé par Michael Faraday (1791-1867), pour aider à la compréhension des phénomènes magnétiques. C'est William Gilbert, en 1600, qui a conclu que notre planète se comporte comme un grand aimant qui serait placé en son centre et générerait une enveloppe magnétique, magnétosphère, nous protégeant des radiations du vent solaire (Fig. III.1b).

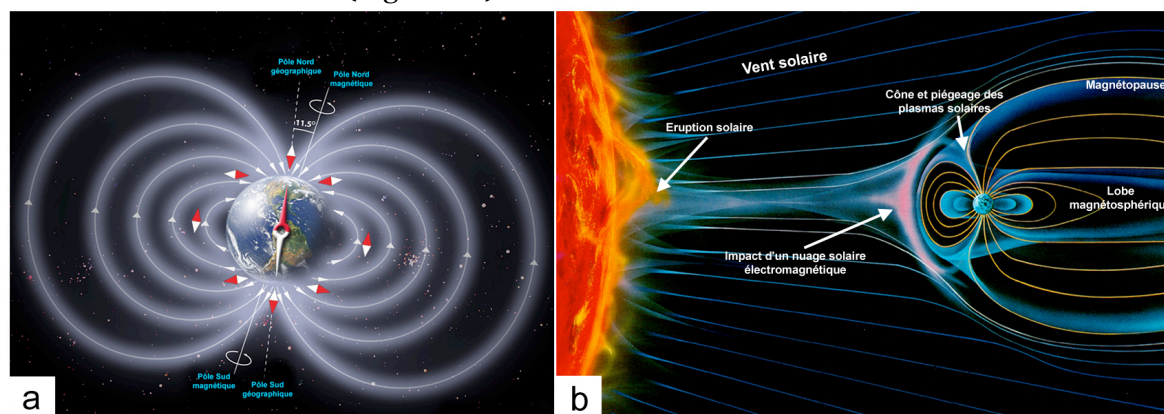


Figure III.1: Le champ magnétique terrestre. a) Lignes de force du champ magnétique terrestre selon lesquelles s'aligne l'aiguille d'une boussole (www.scifun.ed.ac.uk/); b) Schéma de la magnétosphère terrestre et du vent solaire (www.ngdc.noaa.gov/seg/geomag/).

Les mesures paléomagnétiques ont montré que le champ magnétique terrestre existe probablement depuis plus de 3,5 milliards d'années (Embleton and Giddings, 1974). Son intensité, durant les périodes stables, n'a jamais été significativement différente de sa valeur actuelle (Prévoit et Perrin, 1992). L'origine du champ terrestre est à rechercher au niveau du noyau externe liquide qui fonctionne comme une dynamo auto-entretenu où les énergies mécanique et thermique, liées à la convection, génèrent une énergie magnétique et peuvent parfois créer des excursions, voire des inversions du champ magnétique terrestre.

Les premières inversions ont été découvertes par David (1904) et Brunhes (1906) dans des roches volcaniques anciennes, puis par Matuyama (1929) dans des laves du quaternaire. Ces inversions du champ terrestre sont d'échelle globale et une fois datées, servent de référence géochronologique (Fig. III.2).

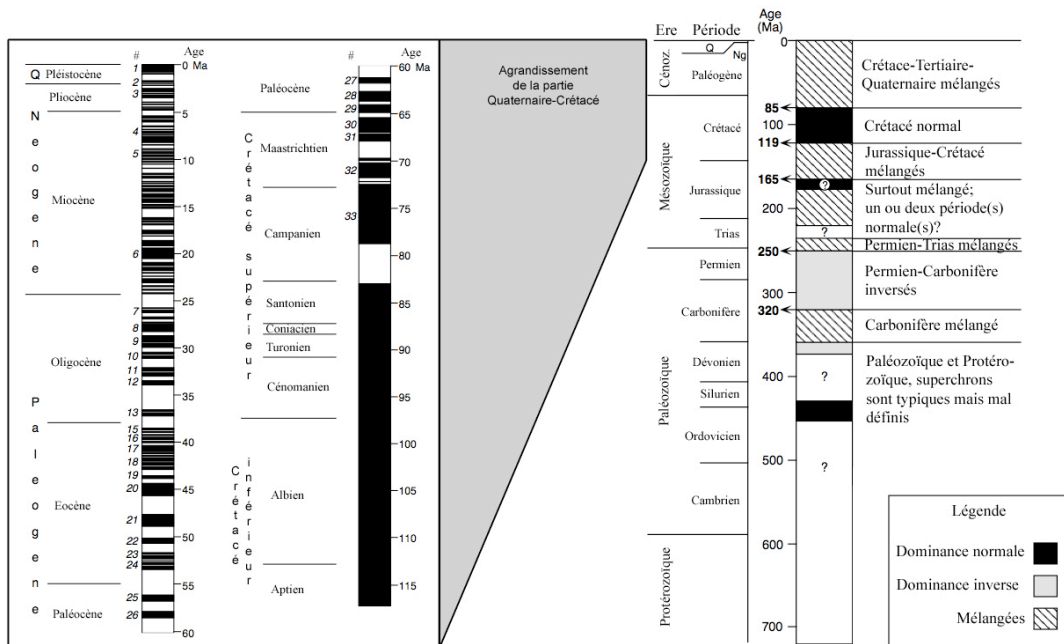


Figure III.2: Echelle géochronologique de la polarité géomagnétique, avec un exemple plus détaillé entre le Quaternaire et le Crétacé (0 à 118 Ma). In Cox (1982).

Le concept de dipôle axial géocentrique (Fig. III.3) considère que le champ magnétique est produit par un dipôle magnétique au centre de la Terre et aligné sur l'axe de rotation.

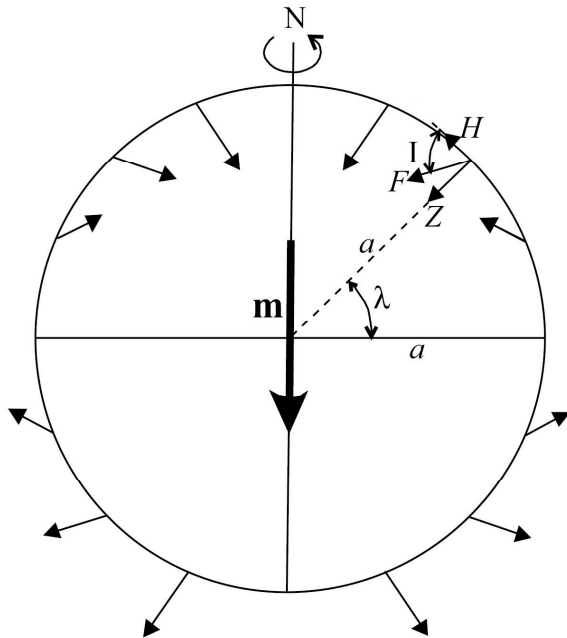


Figure III.3: Schématisation du champ magnétique terrestre: dipôle axial géocentrique.

La tangente de l'inclinaison magnétique I est donné par: $\tan I = 2 \tan \lambda$. Par définition, pour un dipôle axial, la déclinaison par rapport au nord magnétique, $D = 0^\circ$. Cette relation où la latitude du pôle dépend directement de son inclinaison, est centrale en paléomagnétisme, considérant que le modèle du dipôle axial est applicable aux différentes périodes géologiques.

3.2. Origine de l'aimantation des roches

3.2.1. Principes

Classiquement, on définit le moment magnétique M , l'aimantation J , le champ magnétique H et la susceptibilité magnétique χ ou K . Le moment magnétique peut se définir en se référant soit à une paire de charges magnétiques (Fig. III.4a), soit à une boucle de courant électrique (Fig. III.4b). Pour une paire de charges magnétiques, positive et négative, d'intensité m et séparées par une distance infinitésimale, le moment magnétique M est:

$$M = ml$$

Pour une boucle de surface A portant un courant électrique d'intensité I , le moment magnétique est:

$$M = IAn \text{ (unité: A.m}^2\text{)}$$

où n est le vecteur unitaire perpendiculaire au plan de la boucle, dont le sens est donné par la loi d'Ampère. La notion de "charge magnétique" est purement mathématique et sert uniquement à permettre la réalisation des formules déjà disponibles pour l'électricité (statique à l'époque des premières études dans le domaine).

L'aimantation ou l'intensité magnétique J est le moment dipolaire magnétique par unité de volume et donc la somme des moments magnétiques, divisée par le volume intégrant tous ces moments:

$$J = \frac{\sum_i m_i}{\text{volume}}$$

où m_i est le moment magnétique élémentaire et l'unité est A/m.

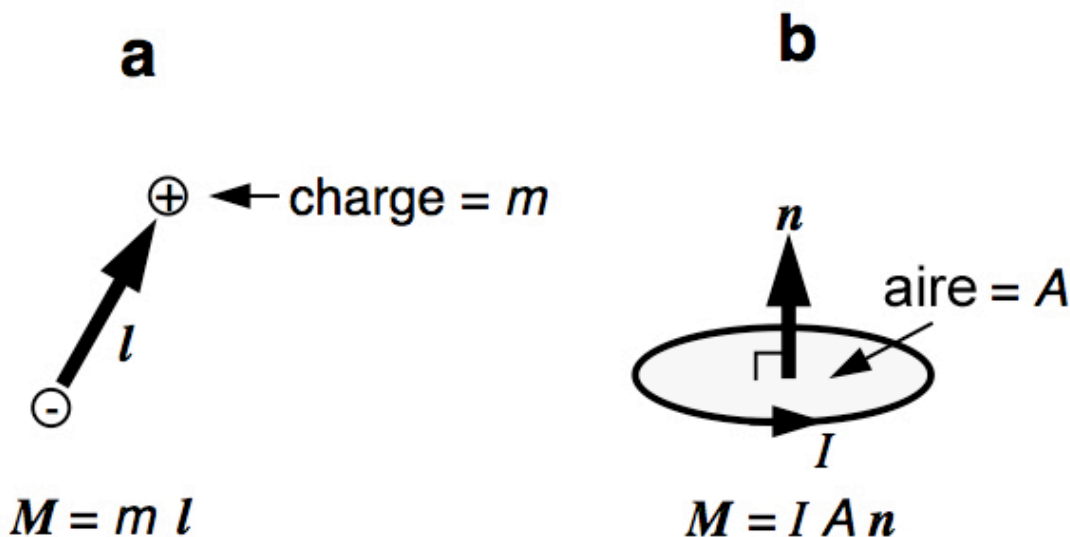


Figure III.4: Schéma du principe d'aimantation de la matière. a) Moment magnétique généré par un dipôle; b) Moment magnétique généré par la rotation d'une charge électrique autour d'un point.



Le **champ magnétique** concerne soit le vecteur champ magnétique inducteur H (exprimé en A/m et indépendant du matériel) soit le vecteur induction magnétique B (exprimé en T et associé à un matériel donné). B inclut les effets de l'aimantation macroscopique M , décrite comme le moment dipolaire par unité de volume, selon la relation:

$$B = \mu_0 (H+M)$$

où μ_0 est la permittivité magnétique du vide, de valeur $4\pi \cdot 10^{-7}$, exprimée en Henry par mètre (H/m) et se note μ pour la permittivité magnétique d'un autre milieu. A l'extérieur du corps magnétique $M = 0$, B et H sont alors parallèles puisque $B = \mu_0 H$. A l'intérieur du corps magnétique M est non nul, B et H sont différents et peuvent même avoir des signes opposés.

L'**aimantation** M (en A/m) comporte deux aspects: l'aimantation **rémanente** (ou rémanence), celle qui persiste en absence de champ H appliqué, et l'aimantation induite (induite par un champ appliqué) qui s'annule quand on supprime le champ. Par exemple, pour des études sous faible champ magnétique (ce qui n'est plus valable champ fort car la rémanence magnétique va changer), le vecteur aimantation naturel M_N est la somme des vecteurs d'aimantation rémanente naturelle (M_{rN}) et induite (M_{iT}) par le champ magnétique de la Terre:

$$M_N = M_{rN} + M_{iT}$$

Pour quantifier l'importance respective de chaque type d'aimantation, on utilise le facteur de Koenigsberger (Q), qui rapporte l'aimantation rémanente naturelle à l'aimantation induite: $Q = M_{rN}/K$, où K ou χ est la **susceptibilité magnétique**, rapport entre l'aimantation induite M_{iT} et l'intensité du champ terrestre (inducteur): $K = M_{iT}/H_T$. K est sans dimension si H_T et M_{iT} sont écrits dans le système international (Tableau III.1).

	Système International (SI)	
	Unités fondamentale s	Unité
Induction magnétique (B)	kg s ⁻¹ A ⁻¹	Tesla (T)
Champ magnétique (H)	C s ⁻¹ m ⁻¹	Ampère m ⁻¹ (A/m)
Aimantation (J)	kg s ⁻¹ C ⁻¹	Tesla (T)
Moment magnétique (M)	C s ⁻¹ m ²	A m ²
Susceptibilité magnétique (K)	Sans dimension	
Susceptibilité magnétique massique (χ)	m ³ Kg ⁻¹	m ³ Kg ⁻¹

Tableau III.1: Unités des paramètres magnétiques usuels. Note: C est le Coulomb qui mesure la quantité d'électricité transportée en une seconde par un courant de un ampère.

3.2.2. Les trois comportements magnétiques

Les théories du diamagnétisme et du paramagnétisme sont apparues en 1905 avec les travaux de Langevin. Le **diamagnétisme** est partout présent car lié à la rotation des électrons autour des noyaux des atomes, rotation qui induit un champ magnétique qui tend à s'opposer au champ extérieur appliqué. Les matériaux qui ne présentent que le comportement diamagnétique sont composés d'atomes ayant un moment magnétique résultant nul. C'est le cas des alcalino-terreux, des gaz rares, Pd, Zn, Cu, et de la plupart des molécules organiques, de l'eau, des acides...etc. La susceptibilité d'un solide diamagnétique est négative, très faible et indépendante de la température (Fig. III.5). Les minéraux à comportement diamagnétique sont par exemple le quartz (SiO_2) et la calcite (CaCO_3) dont la susceptibilité est de l'ordre de 10^{-7} SI. Ces valeurs sont si faibles que l'on ne se préoccupe guère du diamagnétisme et encore moins de son anisotropie.

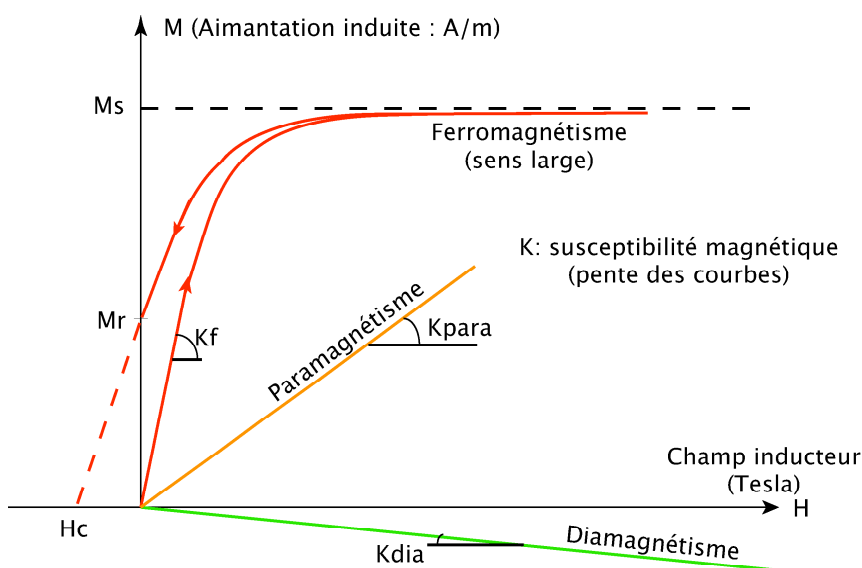


Figure III.5: Susceptibilités diamagnétique (K_{dia}), paramagnétique (K_{para}) et ferromagnétique (K_f).

Le **paramagnétisme** est environ 100 fois plus intense que le diamagnétisme. Il tire son origine du spin des électrons, c'est-à-dire de leur rotation sur eux-mêmes (Stacey and Banerjee, 1974). Sans champ appliqué, le moment magnétique résultant est disposé aléatoirement d'un atome à un autre, ce qui donne un comportement diamagnétique. En présence d'un champ magnétique, ces moments s'alignent parallèlement au champ et une aimantation apparaît qui est inversement proportionnelle à la température. En effet, la vibration atomique (mesurée par la température) peut-être une barrière à cette aimantation en empêchant l'alignement des moments magnétiques avec le champ appliqué. Cette aimantation reste, malgré tout, de faible intensité de l'ordre de 10^{-4} à 10^{-3} SI. Comme dans les matériaux diamagnétiques, l'aimantation paramagnétique s'annule quand on annule le champ magnétique.



L'aimantation portée par le **ferromagnétisme** est au moins 1000 fois supérieure à celle du diamagnétisme. Le terme de ferromagnétisme au sens large s'applique aux matériaux qui possèdent un moment magnétique même en l'absence de champ magnétique externe (aimantation spontanée: M_r ; Fig. III.5). Ce phénomène vient de l'interaction entre spins des atomes de la matière. Ces interactions (soumises aux lois de la mécanique quantique) produisent un champ plus ou moins fort selon la disposition de ces spins. Suivant le type d'ordre magnétique (Fig. III.6), on distingue trois états qui, du plus grand au plus petit moment magnétique résultant, sont: - le ferromagnétisme (les moments sont parallèles et de même sens, comme pour le fer); - le ferrimagnétisme (les moments sont opposés et d'intensité différente, comme pour la magnétite et la pyrrhotite monoclinique); - le faible ferromagnétisme (les moments magnétiques sont opposés et subparallèles, comme pour l'hématite); et - l'antiferromagnétisme (les moments magnétiques sont opposés et parallèles).

Le comportement des minéraux ferromagnétiques s.l. dépend fortement de la température. Il existe une température critique au-delà de laquelle l'aimantation s'annule. C'est la température de Curie. Celle-ci est de 560° à 580°C pour la magnétite (en fonction de sa teneur en Ti substitué au Fe) et supérieure à 650°C pour l'hématite. Au-delà de cette température ces minéraux se comportent comme des paramagnétiques. L'aimantation naturelle et l'effet thermique expriment le "combat" entre la vibration des atomes et l'énergie qui aligne les moments magnétiques dans une direction. Lorsque la température de Curie est atteinte, les 2 énergies sont égales et l'aimantation devient instable.

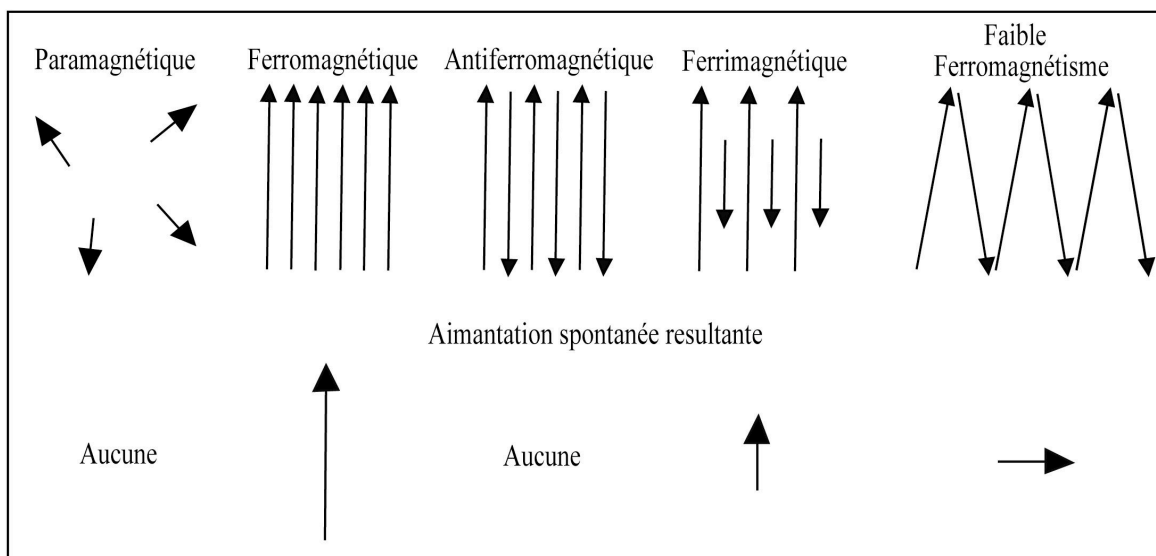


Figure III.6: Etats magnétiques et aimantation spontanée en fonction de la disposition des moments magnétiques (in Dunlop and Ozdemir, 1997).

3.2.3. Hystérésis magnétique

Une substance ferromagnétique originellement (ou préalablement) désaimantée, placée dans un champ magnétique, suit la courbe dite de "première aimantation" qui passe par l'origine (Fig. III.7). Le matériel retient l'enregistrement du champ appliqué sous la forme d'une aimantation rémanente isotherme (ARI), mesurée par M_r sur le chemin c lorsque l'induction magnétique s'annule (Fig. III.7).

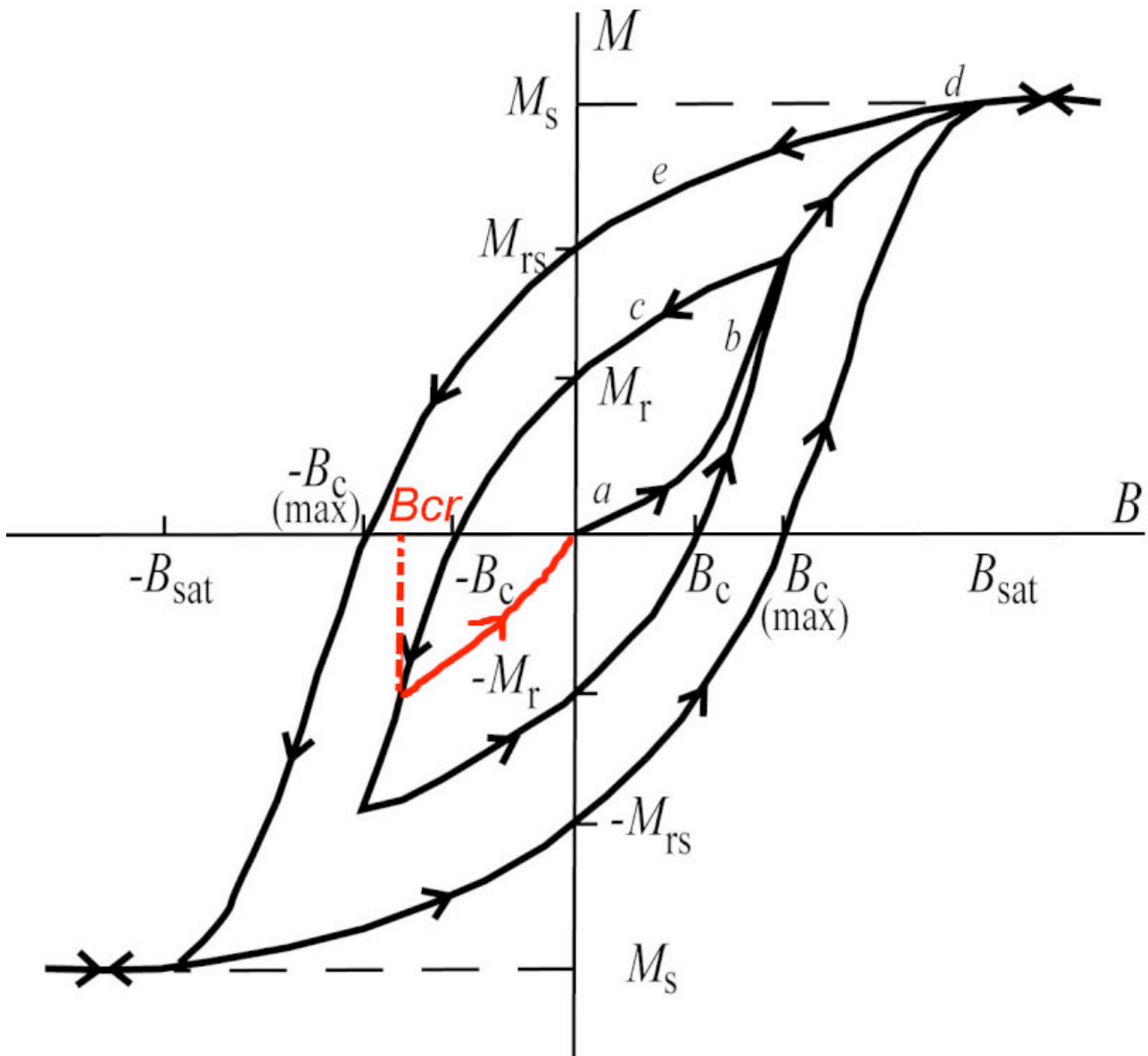


Figure III.7: Aimantation initiale et boucle d'hystérésis (boucle M - B) pour une substance ferromagnétique.



Les matériaux ferromagnétiques présentent une aimantation maximale appelée aimantation à saturation, M_s (Fig. III.7). Ainsi, dans un processus isotherme, l'augmentation de l'intensité du champ inducteur au-delà de ce qui est nécessaire pour atteindre M_s , n'augmente pas l'aimantation (point d; Fig. III.7). L'annulation du champ inducteur est responsable de l'ARI à saturation, ou M_{rs} (chemin e, Fig. III.7). En appliquant le champ dans le sens opposé, on "surmonte" l'ARI en annulant l'aimantation M pour un champ $-B_c$, appelé coercivité ou force coercitive. L'augmentation progressive de B dans la direction négative provoque la saturation dans la direction opposée. Un cycle répété du champ conduit l'aimantation à suivre une boucle réversible dite d'hystérésis (Fig. III.7) découverte par Stoner and Wohlfarth en 1948.

Pour les roches, il est souvent mesuré les courbes ARI pour identifier les principaux minéraux magnétiques. Si des augmentations successives du champ sont appliquées et ensuite retirées dans la direction opposée à M_{rs} , jusqu'à annuler l'ARI, alors le chemin nécessaire pour la réduire à zéro est appelé coercivité de la rémanence (B_{cr}).

3.2.4. Théorie physique du magnétisme des roches

3.2.4.1. Champ démagnétisant

Lorsqu'un corps possède une rémanence magnétique, il possède une énergie magnétostatique (ou encore une énergie d'auto-désaimantation) où sa forme joue un rôle fondamental en lui permettant d'avoir une direction de facile aimantation (ou désaimantation) et une autre de plus difficile aimantation. Le champ interne a tendance à s'opposer à l'aimantation, c'est le champ démagnétisant. Ainsi, une longue barre est plus facile à aimanter en longueur qu'en largeur (Fig. III.8). Quand elle est aimantée selon sa longueur (Fig. III.8a), on peut imaginer des aimants élémentaires à la queue leu-leu où le pôle nord d'un aimant se trouve contre le pôle sud du suivant. L'aimantation totale est alors "aidée" par l'attraction mutuelle des aimants. Les signes + et - s'annulent à l'intérieur du matériau, mais il existe une paire de "charges magnétiques" non compensées à chaque extrémité de celui-ci qui produit le champ démagnétisant. Le champ démagnétisant sera faible. Au contraire, pour aimanter la barre en largeur (Fig. III.8b), les aimants élémentaires tendent à se placer côte-à-côte de telle sorte que les pôles nord des aimants voisins soient adjacents. Par conséquent, les signes + et - ne s'annulent pas et la "charge magnétique" en bordure de barre est forte. On a une forte énergie magnétostatique, et donc un fort champ démagnétisant. Si l'énergie d'échange n'existait pas, les aimants élémentaires se ré-ordonneraient naturellement alternativement, ce qui annulerait l'énergie magnétostatique (Fig. III.8c). Dans le cas d'une géométrie plus complexe tel qu'un ellipsoïde de volume V et d'aimantation M , son énergie magnétostatique sera:

$$E_m = \frac{1}{2} \mu_0 N V M^2$$

où N est le facteur démagnétisant dans la direction M .

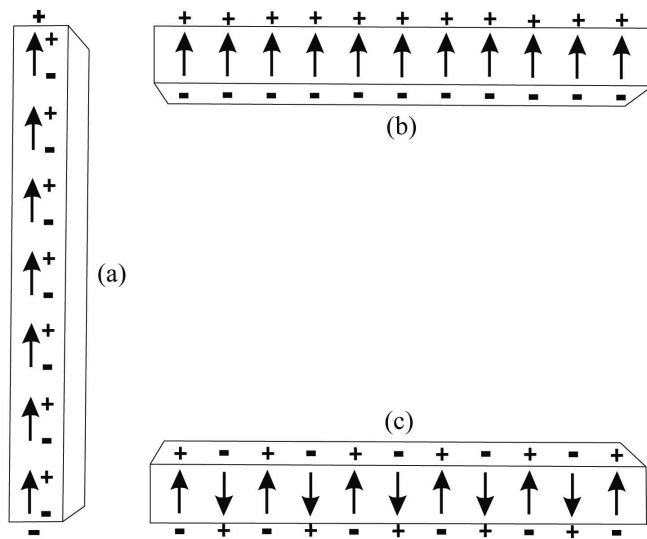


Figure III.8: Schéma d'aimantation d'une barre aimantée. L'aimantation selon la longueur (a) est beaucoup plus facile que selon la largeur (b). Dans cette configuration, les aimants ont tendance à se ré-organiser (c). In McElhinny & McFadden (2000).

3.2.4.2. Domaines magnétiques

Soit un grain ferromagnétique aimanté à saturation et son énergie magnétostatique associée (Fig. III.9a). Si le grain est divisé en deux domaines opposés (Fig. III.9b), son champ interne, et donc son énergie magnétostatique sont diminués. Cependant, une paroi doit exister entre les deux domaines aimantés opposés, où l'énergie magnétique (énergie de paroi) est stockée. Enfin, le système minimisera l'énergie totale. La subdivision en domaines (Fig. III.9c) se poursuivra jusqu'à ce que l'énergie de formation d'une paroi supplémentaire augmente, entraînant une augmentation de l'énergie totale. Les régions ainsi divisées sont appelées des domaines magnétiques (ou de Bloch) et les limites entre ces régions sont appelées parois de domaines (ou de Weiss).

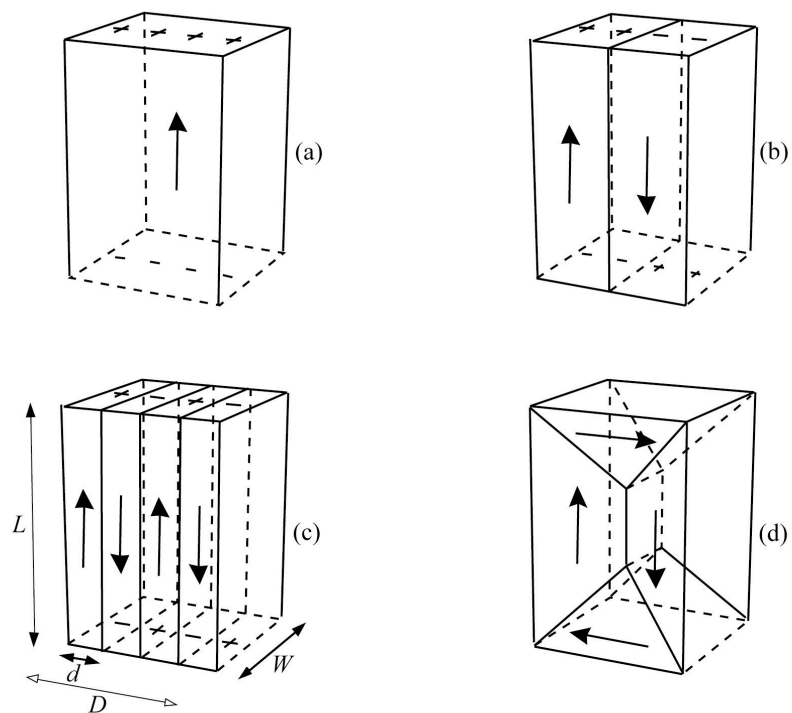


Figure III.9: Subdivision d'un grain ferromagnétique en domaines. (a) Structure monodomaine avec pôles positifs et négatifs largement séparés. (b) Structure bidomaine avec une séparation mineure des pôles. (c) Structure à quatre domaines. (d) Structure bidomaine avec des domaines de fermeture. In Dunlop & Özdemir (1997).

Le changement de direction d'aimantation entre un domaine et son voisin n'est pas brutal à travers un plan atomique unique. L'épaisseur des parois de domaines dépend de la nature de la substance et de la paroi. La magnétite possède une largeur de paroi d'environ 300 distances inter-réticulaires (Dunlop & Özdemir, 1997) et une énergie d'environ 10^{-3} Jm^{-2} .

Le grain de la figure III.10a, est appelé **simple domaine** (SD) ou single-domain. Au-delà d'une certaine taille critique, ce grain sera subdivisé en deux domaines ou plus, pour former un grain à **multiples domaines** (MD) ou multidomain. On observe qu'il est plus favorable de subdiviser un grain avec une paroi parallèle à l'axe long du grain. Une autre manière de réduire ou d'éliminer l'énergie magnétostatique est d'ajouter des domaines de fermeture aux limites du grain ou perpendiculaires à d'autres domaines (Fig. III.9d), ce qui supprime les pôles de surface et le champ externe, et réduit ainsi l'énergie de paroi.

3.2.4.3. Relaxation magnétique et super-paramagnétisme

La relaxation magnétique est l'affaiblissement, avec le temps, de l'aimantation rémanente d'un assemblage de grains monodomains ou polydomaines. C'est l'effet le plus direct de la température. Cette relaxation de l'aimantation rémanente s'écrit :

$$M_t = M_o \exp(-t/\tau)$$

où M_t est l'aimantation rémanente en fonction du temps, M_o est l'aimantation rémanente initiale ($t = 0$), et τ est le temps de relaxation des grains pour lequel l'aimantation rémanente est divisée par e , par rapport à l'aimantation rémanente initiale ($M_r = M_{ro}/e$).

Lorsque le temps de relaxation est faible, de l'ordre de 100 secondes, l'aimantation acquise par un ensemble de grains est perdue dès qu'elle est acquise. Les grains sont magnétiquement instables, dû à l'agitation thermique. L'application d'un champ faible leur permet d'atteindre rapidement l'équilibre avec ce champ. Le moment ainsi acquis est appelé aimantation d'équilibre. Cette aimantation disparaît à un taux déterminé par le temps de relaxation. Les grains ayant ce comportement sont appelés **super-paramagnétiques** (SP). Le temps de relaxation devient très faible quand la température T est élevée ou quand la taille du grain est petite. Pour chaque grain de volume v il existe une **température critique de blocage**, T_B , à laquelle τ devient petit (de l'ordre de 100 s). De même, à une température T donnée, il existe un **volume critique de blocage**, v_B , pour lequel τ devient petit. On peut écrire que le temps de relaxation τ_1 à température T_1 se relie au temps de relaxation τ_2 à la température T_2 sous la forme suivante:

$$T_1 \ln(f\tau_1) \approx T_2 \ln(f\tau_2) .$$

Ce qui signifie que l'on obtient le même effet sur la rémanence en maintenant T_1 pendant longtemps, ou bien à $T_2 > T_1$ pendant un temps plus court. Par exemple, pour $f = 10^9 \text{ s}^{-1}$, maintenir une température de 150°C pendant 100 années équivaut à maintenir une température de 500°C pendant 1000 s. Ces valeurs ne sont évidemment qu'indicatives.

3.2.4.4. Grains pseudo-monodomaines et taille critique des grains

Stacey (1962) avait proposé l'existence de grains MD contenant un petit nombre de domaines, se comportant comme des grains SD qu'il a appelé grains **pseudo-simple domaine** (PSD). Par la suite, les derniers travaux de Dunlop (2002; a et b) ont montré que ces PSD n'étaient qu'un mélange de grains SD et polydomaines ou même de grains super-paramagnétiques avec des grains MD.

Les études sur les domaines (Fig. III.10) montrent qu'en absence d'un champ externe appliqué, l'énergie magnétostatique diminue quand le nombre de domaines n augmente. La théorie prédit que la taille critique d_0 pour la transition entre domaine simple (SD) et domaine double ($n = 2$) survient quand l'énergie magnétostatique équilibre l'énergie de la paroi, E_p (i.e., les énergies des structures SD et MD sont égales).

Puisque l'aimantation de saturation M_s diminue avec l'augmentation de la température, les grains bi-domaines et sous température ambiante peuvent se transformer en SD à haute température (i.e. proche de la température de Curie). Pour les titanomagnétites, dont la valeur de M_s diminue avec l'augmentation du pourcentage de Ti, la taille critique SD ($d_0 = 0,01 \mu\text{m}$) est plus grande que celle de la magnétite pure ($M_s = 480.10^3 \text{ A/m}$). L'hématite, avec $M_s = 2,2.10^3 \text{ A/m}$ a de beaucoup plus grandes valeurs de d_0 , de l'ordre de $15 \mu\text{m}$ (Dunlop & Özdemir, 1997) qui sont alors considérées comme des grains SD.

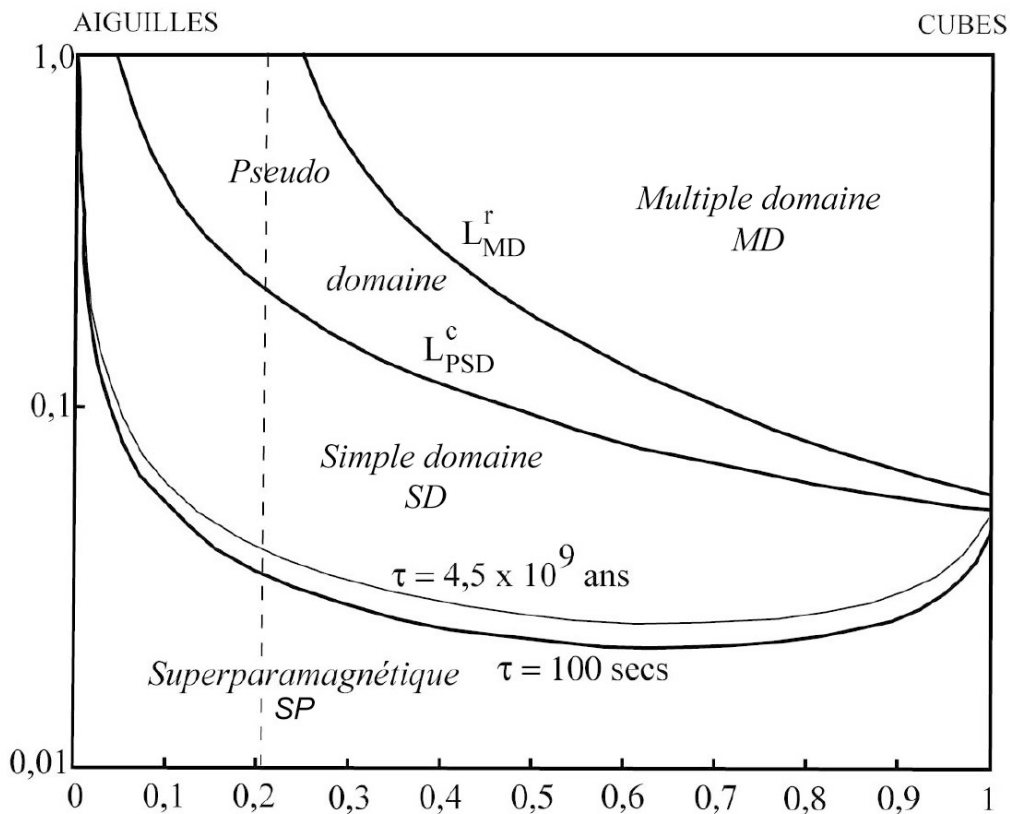


Figure III.10: Forme de grain, temps de relaxation magnétique et type de comportement pour la magnétite. L_{MD}^c et L_{MD}^r sont les tailles critiques qui correspondent au maximum de coercivité pour les grains SD, et la coercivité de la rémanence pour les grains MD, respectivement. In Newell & Merrill (1999).



Newell et Merrill (1999) ont considéré le cas de parallélépipèdes rectangles (Fig. III. 10). Il y a deux tailles critiques, L_{cMD} et L_{rMD} , qui correspondent au maximum de coercivité et à la coercivité de la rémanence respectivement, où la valeur de L_{rMD} est toujours supérieure à la valeur de L_{cMD} . Dans cette figure, on voit que la région du comportement super-paramagnétique est caractérisée par un temps de relaxation très court ($\tau \leq 100s$). La limite des simples domaines s'approche de l'infini quand l'allongement des grains s'accroît, par conséquent, les magnétites très allongées peuvent avoir un comportement de simple domaine. Le temps de relaxation dans le champ SD (Fig. III.11), est presque partout plus élevé que l'âge de la Terre, ce qui suscite un grand intérêt en paléomagnétisme pour retenir les rémanences tout au long des temps géologiques. Enfin, le temps de relaxation augmente avec le volume v pour les grains SD, avec un maximum à proximité de la limite entre SD et PSD.

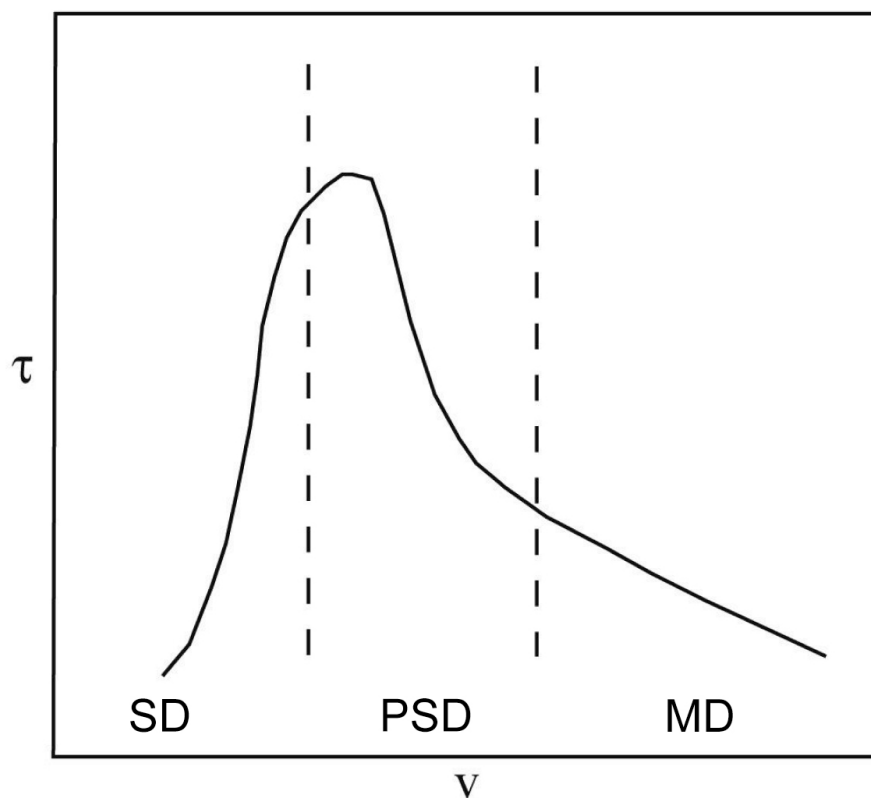


Figure III.11: Temps de relaxation en fonction du volume du grain v , les autres facteurs étant maintenus constants. In Merrill & McElhinny (1983).

3.2.5. Les différents types d'acquisition de l'aimantation

Les paléomagnéticiens ont classé les types d'aimantation en fonction des mécanismes de leur acquisition.

L'**aimantation rémanente naturelle (ARN)** est l'aimantation présente dans la roche avant son traitement en laboratoire. L'ARN est acquise grâce au champ magnétique terrestre et son mode d'acquisition dépend de l'histoire de la roche. Le vecteur ARN est composé de plusieurs composantes. La composante acquise pendant la formation de la roche est appelée ARN primaire. C'est cette composante qui est recherchée dans la plupart des investigations paléomagnétiques. Des composantes secondaires peuvent être acquises après la formation de la roche, et obscurcir l'ARN. Ces composantes secondaires remplacent et s'additionnent vectoriellement à la composante primaire pour former l'ARN totale. Les trois formes les plus communes de l'ARN sont (1) l'aimantation thermorémanente, acquise pendant le refroidissement de la roche, en particulier dans le cas des roches éruptives et métamorphiques; (2) l'aimantation rémanente chimique, formée par croissance de grains ferromagnétiques au-dessus de la taille critique entre les SP et SD; et (3) l'aimantation rémanente détritique, acquise pendant l'accumulation des roches sédimentaires contenant des minéraux ferromagnétiques. Ces trois formes ont des valeurs d'aimantation (M) de l'ordre de 1 A/m pour les basaltes, 10^{-1} A/m pour les roches granitiques, 10^{-2} A/m pour les siltites non marines et 10^{-4} A/m pour les siltites marines (Butler, 1992).

Aimantations thermorémanente totale (ATR) et partielle (ATR_p). La rémanence acquise par la roche lors de son refroidissement est appelée aimantation thermorémanente totale (TRM). Cette aimantation spontanée, parallèle et de même sens que le champ magnétique inducteur H , est acquise quand la roche possède une température inférieure à la température de blocage des grains. L'intensité de l'ATR est proportionnelle au champ appliqué H , si celui-ci est faible comme c'est le cas du champ terrestre. Le moment magnétique total est la somme de tous les moments magnétiques portés par les grains. Du fait de l'existence du temps de relaxation (τ), chaque grain possède sa propre température de blocage qui est approximativement fonction de son volume. Schématiquement, plus le volume du grain magnétique est petit plus sa température de blocage est basse pour les grains SD et inversement pour les grains MD (Fig. III.11). La température de blocage maximum correspond à la température de Curie. Au-dessus de cette température aucun ordre magnétique n'est possible. Une roche qui se refroidit dans un champ H entre les températures T_1 et T_2 inférieures à la température de blocage maximum acquiert une aimantation thermorémanente partielle (ATR_p) plus faible que l'ATR acquise dans le même champ, mais qui a des propriétés semblables (Thellier, 1938). De plus, la somme des ATR_p acquises dans un champ H entre T_1 - T_2 et T_1 - T_3 est égale à l'ATR_p acquise entre T_1 et T_3 . C'est la loi d'addition des ATR_p que l'on écrit, (si le champ H est identique entre T_1 et T_3) sous la forme:

$$\text{ATR}_p(T_1, T_2)_H + \text{ATR}_p(T_2, T_3)_H = \text{ATR}_p(T_1, T_3)_H.$$

Cette relation est en fait une relation vectorielle. Tout se passe comme si chaque grain magnétique gardait en mémoire la température à laquelle il a acquis son aimantation. Un chauffage à la température T , suivi d'un refroidissement en champ nul, détruit les parties d'ATR acquises par les grains sensibles à la température T .



Aimantation rémanente chimique (ARC) peut être acquise dans une roche lorsque se forment de nouveaux minéraux magnétiques même au-dessous de la température de Curie de ces minéraux. Lors de leur croissance, ils sont soumis au champ magnétique ambiant et acquièrent une aimantation à partir du moment où ils atteignent un volume critique (SP -->SD).

Aimantation rémanente détritique, ou de dépôt (ARD) est celui des sédiments contenant de fines particules magnétiques qui ont été érodées, transportées puis sédimentées. Ces particules possèdent une aimantation acquise antérieurement. Durant leur traversée de la colonne d'eau ces particules s'orientent de façon à ce que leurs moments s'alignent statistiquement selon la direction du champ magnétique ambiant. Une aimantation rémanente dite post-détritique peut être acquise après le dépôt et avant la consolidation. Elle correspond soit à la réorientation des grains magnétiques sous l'effet du champ terrestre, si les particules sont suffisamment libres, soit encore à des rotations globales de l'ensemble des particules sous l'effet de la compaction, des bioturbations, ou d'autres processus pouvant affecter le sédiment.

Aimantation rémanente visqueuse (ARV) est acquise lorsque les grains magnétiques contenus dans une roche sont, à température ambiante, exposés à un champ magnétique pendant un temps suffisamment long par rapport au temps de relaxation de certains grains. L'intensité de cette ARV varie comme le logarithme du temps. Une telle aimantation parasite, parfois non négligeable, peut être acquise en quelques minutes. Ces ARV peuvent être détruites par un séjour prolongé en champ nul, par chauffage à température modérée (environ 100°C) suivi d'un refroidissement en champ nul, par application d'un champ alternatif, ou encore par refroidissement sous la température de changement de la géométrie du réseau cristallin du porteur, température dite de Verwey (110°K pour la magnétite).

Les autres aimantations possibles sont exceptionnelles dans la nature. L'**aimantation rémanente isotherme (ARI)** est acquise, à une température donnée, par l'effet d'un champ H, en général fort, supérieur au champ coercitif des grains. Cette aimantation, facile à obtenir en laboratoire, peut être acquise naturellement lors d'un coup de foudre. Dans ce cas; l'ARI détruit et remplace toutes les aimantations antérieures. L'**aimantation rémanente anhystérétique (ARA)**, obtenue par l'action conjointe d'un champ alternatif fort et d'un champ continu faible, est très utilisée pour caractériser la minéralogie magnétique des roches, comme on le verra au chapitre 4. Ce type d'aimantation est inconnu dans la nature. Enfin, l'**aimantation piézorémanente (APR)** est obtenue par action d'une contrainte et d'un champ magnétique (Pozzi, 1973).

3.2.6. Aimantation des minéraux naturels terrestres

Les principaux minéraux aimantables et présents sur Terre sont les minéraux porteurs de fer: oxydes de fer et certains sulfures de fer. Les aspects tels que l'aimantation à saturation, la température de Curie et les tailles de grain seront particulièrement importants à connaître car ils affectent de manière importante le signal magnétique des minéraux.

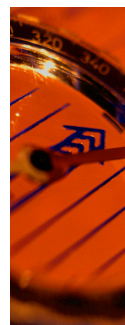
3.2.6.1. Minéraux paramagnétiques et diamagnétiques

La plupart des minéraux de la nature sont diamagnétiques ou paramagnétiques, à température ambiante. Tout minéral possède une aimantation diamagnétique caractérisée par une susceptibilité négative. Le quartz (SiO_2) et la calcite (CaCO_3), qui ne contiennent pas de fer, sont seulement diamagnétiques.

Les minéraux paramagnétiques interviennent par leur susceptibilité, qui est faible et positive à température ambiante, et qui est inversement proportionnelle à la température sur une large gamme de températures, comme décrit par l'équation de Curie-Weiss:

$$k = C/(T-T_{Cp}).$$

Les minéraux étant presque toujours des solutions solides, les valeurs de la température de Curie paramagnétique T_{Cp} varient en fonction du taux de substitution du fer (\pm manganèse ou Ti) dans le réseau du minéral. Les principaux minéraux paramagnétiques sont certains oxydes contenant Fe, Mn ou Cr, comme la sidérite (FeCO_3), les silicates riches en fer, dont les principaux sont les olivines, les pyroxènes, les amphiboles, les phyllosilicates (biotite, muscovite, argiles), les chlorites, les grenats, la cordiérite et la tourmaline. La température à laquelle ces minéraux s'ordonnent magnétiquement est inférieure à -213°C (olivine ferrifère), et le plus souvent inférieure à -263°C . Les températures varient en fonction de la teneur en Fe et du rapport $\text{Fe}^{2+}/\text{Fe}^{3+}$. Dans de nombreux silicates contenant du fer, la teneur de cet élément est trop faible pour qu'un ordre soit observé jusqu'à -271°C , et l'on trouve une valeur de T_{Cp} proche de -273°C (Dunlop et Ozdemir, 1997).



3.2.6.2. Les minéraux ferromagnétiques

Les principaux minéraux de cette catégorie sont les oxydes de fer et de titane (Fe-Ti). Leur composition est représentée dans le diagramme ternaire FeO-TiO₂-Fe₂O₃ (Fig. III.12), qui distingue deux principales séries de solutions solides: les titanomagnétites et les titanohématites. Les membres de ces deux séries sont des phases primaires des roches magmatiques, constituant 1% à 5% de leur volume, et des phases (le plus souvent) détritiques dans les sédiments.

Les oxydes cubiques fortement magnétiques, que forment la magnétite (Fe_3O_4) et sa solution solide avec l'ulvospinelle (Fe_2TiO_4), sont appelés titanomagnétites. Les minéraux rhomboédriques, moins magnétiques, basés sur l'hématite ($\alpha\text{Fe}_2\text{O}_3$) et sa solution solide avec l'ilménite (FeTiO_3), sont appelés titanohématites. Enfin, les membres de la série orthorhombique de la pseudobrookite (Fe_2TiO_5) sont paramagnétiques à température ambiante. Aux plus basses températures peuvent apparaître des exsolutions, qui peuvent donner naissance, pour les titanomagnétites, à une phase riche en ulvospinelle et une autre riche en magnétite. Cependant, les intercroissances magnétite-ulvospinelle sont assez rares dans la nature à cause de la présence d'oxygène qui oxyde les titanomagnétites, soit dans le magma lui-même, soit au cours du transport en milieu aqueux ou éolien.

Ainsi en général, l'oxydation se produit-elle pendant le refroidissement initial de la roche, au-dessus de la température de Curie. De plus, l'oxydation à basse température, ou maghémitisation, peut se produire à des températures inférieures à 200°C, formant des titanomaghémites, une forme transitionnelle entre les titanomagnétites et les titanohématites.

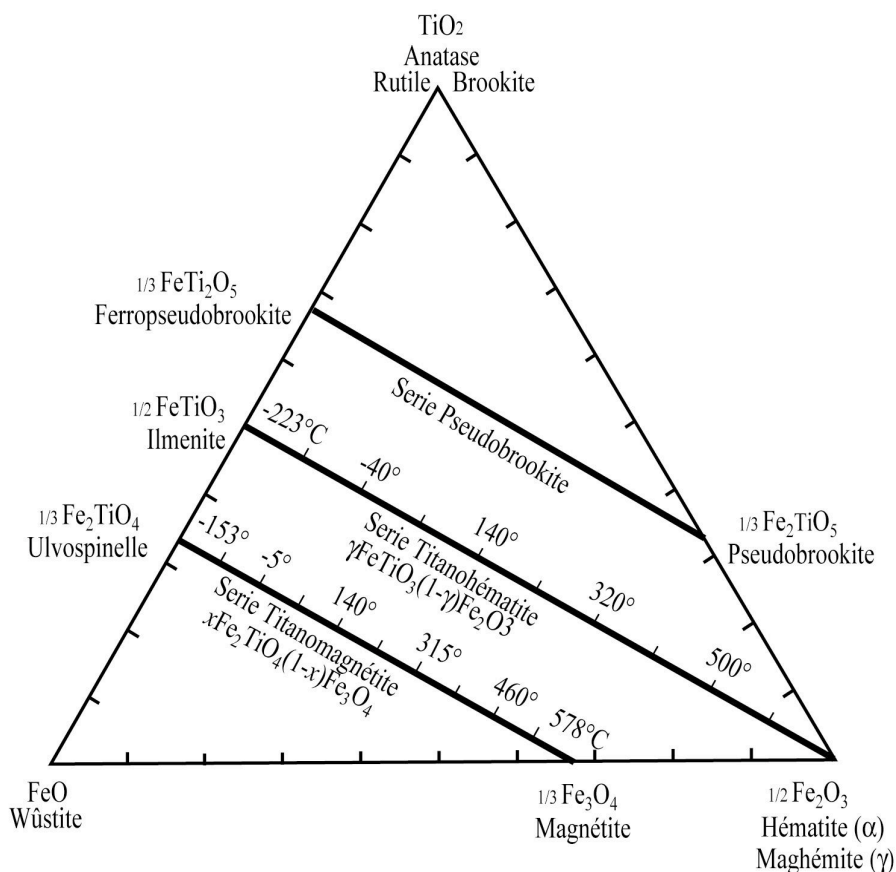


Figure III.12: Les trois principales séries de solutions solides du système FeO-TiO₂-Fe₂O₃ des roches magmatiques. Pour les titanomagnétites et les titanohématites sont notées (par intervalles de 0,1 mole) les températures de Curie. In Merrill & McElhinny (1983).

Parmi les sulfures, le principal minéral ferromagnétique est la pyrrhotite monoclinique (Fe_{1-x}S, où 0 < x ≤ 1/8). C'est un minéral magnétique accessoire commun mais qui domine rarement la rémanence des roches. La greigite (Fe₃S₄) se rencontre plutôt dans les sédiments formés sous condition anoxique, dont les mécanismes de formation restent discutés (Roberts and Weaver, 2005).

Minéral	Composition	Etat magnétique	M_s (10^3 Am^{-1})	T_c (°C)
Magnétite	Fe_3O_4	Ferrimagnétique	480	580
Titanomagnétite (TM60)	Fe_2TiO_4	Ferrimagnétique	125	150
Ulvospinelle	$\text{Fe}_{2,4}\text{Ti}_{0,6}\text{O}_4$	Antiferromagnétique	-	-153
Hématite	$\alpha\text{Fe}_2\text{O}_3$	Faible ferromagnétisme	$\approx 2,5$	675
Ilménite	FeTiO_3	Antiferromagnétique	-	-233
Maghémite	$\gamma\text{Fe}_2\text{O}_3$	Ferrimagnétique	380	590-675
Pyrrhotite	Fe_{1-x}S ($0 < x \leq 1/8$)	Ferrimagnétique	≈ 80	320
Greigite	Fe_3S_4	Ferrimagnétique	125	≈ 330
Goethite	αFeOOH	Antiferromagnétique avec ferromagnétisme de défaut	≈ 2	120
Fer	Fe	Ferromagnétique	1715	765
Cobalt	Co	Ferromagnétique	1422	1137
Nickel	Ni	Ferromagnétique	484	358

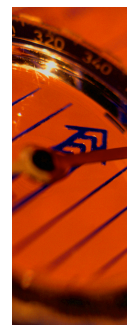
Tableau III.2: Propriétés magnétiques de quelques minéraux communs; M_s représente l'aimantation à saturation et T_c la température de Curie. In McElhinny et McFadden (2000).

Enfin, deux oxy-hydroxydes de fer sont importants, la goethite (αFeOOH) et la lépidocrocite (γFeOOH). Le Tableau III.2 présente les compositions et propriétés magnétiques de quelques minéraux magnétiques communs.

Les (titano-)magnétites

Les **titanomagnétites** (TM) sont des minéraux cubiques de composition comprise (Fig. III.12) entre magnétite (Fe_3O_4) et ulvospinelle (Fe_2TiO_4). Ces minéraux font partie du groupe du spinelle (type inverse) où les cations appartiennent à deux réseaux A, de coordination quadruple avec l'oxygène, et B, de coordination sextuple. La formule générale est donnée par $\text{Fe}_{3-x}\text{Ti}_x\text{O}_4$, où x ($0 \leq x \leq 1$) représente le paramètre de composition qui donne la fraction de titane (Ti), exprimée en pourcentage. Ainsi, x varie de 0 pour la magnétite à 1 pour l'ulvospinelle (O'Reilly and Banerjee, 1965; Banerjee, 1966; Soffel, 1977; Wechsler et al., 1984; Kakol et al., 1991).

La **magnétite** est fortement magnétique, avec une aimantation de saturation de $480 \times 10^3 \text{ A/m}$, une maille de $a = 8,396 \text{ \AA}$ et une température de Curie de 580°C . Quand la proportion en ulvospinelle augmente, la dimension de la maille augmente et la température de Curie diminue. L'ulvospinelle, de maille $8,535 \text{ \AA}$, est paramagnétique à température ambiante et antiferromagnétique à basse température avec une température de Curie de -153°C (Tableau III.2). Ainsi, l'addition de titane dans la structure de la magnétite diminue à la fois la température de Curie et l'aimantation à saturation. Si la magnétite est refroidie à environ -153°C (température de Verwey), elle passe de la symétrie cubique à la symétrie monoclinique par légère déformation du réseau. Cette température est celle au-dessous de laquelle la magnétite devient un isolant électrique. Dans les titanomagnétites la transition de Verwey disparaît pour des compositions où $x > 0,1$ (Dunlop, 1987; Moon, 1991; Muxworthy and McClelland, 2000).



La solution solide homogène des titanomagnétites, observée à haute température pour des compositions intermédiaires, n'est préservée à température ambiante que si elles sont refroidies rapidement, comme dans le cas des basaltes océaniques. Si, au contraire, la roche est refroidie lentement à haute température (1000°-600°C) l'oxygène est en général en quantité suffisante pour oxyder la titanomagnétite en titanohématite (Hagerty 1976; Fig. III.12).

L'altération des titanomagnétites à température inférieure à 200°C peut conduire à la formation de spinelles appauvris en cations. L'exemple classique est l'oxydation de la magnétite en maghémite ($\gamma\text{Fe}_2\text{O}_3$), chimiquement équivalent à l'hématite ($\alpha\text{Fe}_2\text{O}_3$) mais avec une structure cristalline de spinelle. Cependant, c'est un minéral instable qui se transforme en hématite dès qu'il est chauffé à plus de 250°C.

L'hématite apparaît par oxydation à haute température de la titanomagnétite, pendant le refroidissement ou à travers l'inversion de la titanomaghémite lors d'un réchauffement ultérieur. Elle apparaît aussi comme produit final de l'oxydation prolongée de la magnétite à température ambiante. Dans ce cas, la pseudomorphose des cristaux de magnétite en hématite est appelée martite. L'hématite apparaît aussi par d'autres processus secondaires importants comme l'inversion de maghémite, ou par déshydratation de produits d'altération comme la goethite. Dans les sédiments rouges, l'hématite se présente essentiellement sous deux formes: (i) comme pigment rouge ou ciment à grain fin ($< 1 \mu\text{m}$), qui a précipité à partir de solutions riches en fer dans l'espace de pores des sédiments clastiques, donnant des couches-rouges caractéristiques (red-beds), ou (ii) comme de "grands" grains ($< 10 \mu\text{m}$) d'origine détritique, parfois appelés galène de fer. Il existe de nombreux autres dérivés d'oxydes de fer plus ou moins substitués par du titane mais ces minéraux, trop rares, n'ont pas lieu d'être décrits dans ce mémoire. L'aimantation de l'hématite à saturation (M_s) $\sim 2,5.10^3$ A/m, soit 200 fois plus faible que la magnétite et sa température de Curie est $T_c \sim 675^\circ\text{C}$.

Les sulfures de fer

Les sulfures de fer sont présents dans les milieux plutôt réducteurs. La **greigite** (Fe_3S_4), initialement considérée comme rare, s'avère finalement fréquente dans les sédiments accumulés en condition anaérobie (Roberts and Turner, 1993; Sagnotti and Winkler, 1999; Neretin et al., 2004). Dans la zone de réduction des sédiments marins, la magnétite à grain fin et d'autres oxydes ont tendance à se transformer en sulfures, particulièrement en pyrite (FeS_2). La pyrite n'étant que paramagnétique, il en résulte que les sédiments formés en condition anaérobie sont souvent peu magnétiques. Cependant, en condition sulfato-réductrice typique des boues et de certains sédiments marins rapidement déposés, les sulfures magnétiques greigite et pyrrhotite peuvent être préservés (Roberts and Turner, 1993).

La **greigite** (Fe_3S_4) est le sulfure équivalent en géométrie cristalline à la magnétite qui possède la même structure de spinelle inverse (Dekkers and Schoonen, 1996). Elle est ferrimagnétique avec une aimantation de saturation de 125×10^3 A/m, soit environ 25% de celle de la magnétite, et une température de Curie d'environ 330°C (Tableau III.2).

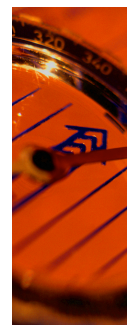
La **pyrrhotite** (Fe_{1-x}S , $0 < x < 1/8$) est un minéral accessoire commun, spécialement des roches magmatiques formées à partir de magmas riches en soufre, et fréquent comme minéral secondaire des sédiments marins profonds (Dekkers, 1988; Rochette et al., 1990). La pyrrhotite naturelle est en réalité un mélange de Fe_7S_8 monoclinique, qui est ferrimagnétique, et de phases hexagonales ou quadratiques, antiferromagnétiques, comme Fe_9S_{10} et $\text{Fe}_{11}\text{S}_{12}$. La pyrrhotite monoclinique possède un réseau cristallin qui la rend ferrimagnétique, comme pour la maghémite. L'aimantation de saturation de la pyrrhotite monoclinique est d'environ 80×10^3 A/m, soit environ 1/6 de celle de la magnétite, et sa température de Curie est de 320°C , quasiment identique à celle de la greigite (Tableau III.2).

Les **oxy-hydroxydes de fer** sont des produits d'altération des oxydes de fer, collectivement appelés limonite. La goethite orthorhombique (αFeOOH) est le plus commun d'entre-eux et se rencontre dans les sols et les sédiments. La goethite est antiferromagnétique, avec une température de Curie de 120°C . Comme pour l'hématite (avec laquelle la goethite est souvent en inter-croissance), son faible ferromagnétisme parasite superposé à son axe de facile aimantation provient probablement d'un défaut de moment. L'aimantation de saturation de la goethite, d'environ 2×10^3 A/m, est inférieure à celle de l'hématite. Enfin, la goethite se déshydrate en hématite entre 250°C et 400°C (Dekkers, 1988).

Pour finir, la **lépidocrocite** (γFeOOH) est un composant mineur des sols et des sédiments, antiferromagnétique, avec une température de Curie bien en-dessous de la température ambiante (Gehring and Hofmeister, 1994; Hirt et al., 2002). Cependant, même si elle ne porte aucune rémanence, elle constitue une phase importante puisqu'elle se déshydrate en maghémite (fortement magnétique) quand elle est chauffée au-dessus de 250°C . A plus haute température encore, vers 400°C , la maghémite se transforme à son tour en hématite. Par conséquent, quand on chauffe des échantillons contenant la lépidocrocite, les effets magnétiques peuvent être étranges, un minéral initialement non magnétique se transformant tout d'abord en minéral fortement magnétique puis, finalement, en un minéral faiblement magnétique (Morris et al., 1998).

3.3. Techniques de mesure magnétique

Les nombreuses mesures magnétiques ont été réalisées au laboratoire de magnétisme des roches du LMTG de Toulouse, à l'exception des mesures d'hystérésis qui ont été effectuées au CEREGE d'Aix en Provence, et des mesures à basse température au magnétomètre SQUID, qui ont été faites au LCC (Laboratoire de Chimie de Coordination, UPR CNRS#8241) de Toulouse. Nous allons aborder ici les notions de magnétisme environnemental et de paléomagnétisme qui seront utilisées dans ce mémoire, en y associant les appareillages utilisés et leurs caractéristiques.



De nombreux auteurs ont progressivement mis au point des paramètres magnétiques capables de souligner un caractère particulier, tel que la taille des grains magnétiques, leur concentration, leur nature et leur interaction, ... données aussi importantes les unes que les autres car elles s'influencent mutuellement et donc transforment le signal magnétique (Collinson, 1983). Dans ce mémoire, de nombreuses techniques ont été utilisées et ont été couplées à des données chimiques et physiques (Lindsay et al., 1966; Hunt et al., 1995). Contrairement aux roches cristallines pour lesquelles il y a peu de transformations minérales, les sédiments et les roches sédimentaires représentent des environnements complexes où apparaît une grande variété de comportements magnétiques. Plusieurs mécanismes de transformation minérale interviennent, ainsi que plusieurs types d'acquisition de l'aimantation, entre le moment du dépôt des particules et celui de la mesure de l'échantillon. En ce sens, connaître les états physico-chimiques de la roche avant son étude magnétique est un préalable à l'interprétation des enregistrements magnétiques qui résultent essentiellement des influences minéralogiques (Evans and Heller, 2003).

3.3.1. Apports de la susceptibilité magnétique

La susceptibilité magnétique est normalisée soit au volume de l'échantillon (K , adimensionnel en SI) soit à sa masse (χ , en m^3/kg). Elle permet de détecter rapidement et simplement des anomalies magnétiques en surface, si on étudie de vastes régions, ou d'estimer la concentration en minéraux magnétiques dans des échantillons en fonction, bien entendu, de la température et éventuellement de la taille des grains. Les mesures de susceptibilité ont été effectuées avec un susceptomètre Kappabridge KLY-3 (Agico, inc.) opérant sous champ faible alternatif de $4 \cdot 10^{-4}$ T (de fréquence 920 Hz) avec une sensibilité d'environ $5 \cdot 10^{-8}$ SI (Fig. III.13). Le principe de la mesure repose sur une méthode de zéro (celle du pont, d'où "Bridge") permettant de rétablir la perturbation d'inductance d'une bobine, provoquée par l'échantillon placé au centre de la bobine. Cette perturbation est fonction de la quantité de porteurs magnétiques dans l'échantillon, et de son état dans le réseau des minéraux.



Figure III.13: Susceptomètre Kappabridge KLY-3 et son unité de contrôle (www.agico.com).

La susceptibilité peut-être fonction de la fréquence sous laquelle la mesure est effectuée (χ_{fd}). La mesure de la susceptibilité sous deux fréquences distinctes permet de mettre en évidence la présence et la quantité de grains super-paramagnétiques et d'en estimer la proportion, puisque ceux-ci ne répondent pas avec la même intensité selon la fréquence. Le taux de relaxation magnétique des grains, qui diffère selon la fréquence de mesure, sert également de critère de mesure (Smirnov and Tarduno, 2001). De telles mesures ont été effectuées au CEREGE avec un appareil Bartington MS2B (Fig. III.14).



Figure III.14: Susceptomètre Bartington MS2B qui présente deux fréquences de mesure (0,465 kHz \pm 1% et 4,65 kHz \pm 1%) pour un champ faible maximum de 250 μ T \pm 10% (www.bartington.com).

Diagrammes K(T) ou courbes thermomagnétiques de la susceptibilité:

L'enregistrement continu de la susceptibilité pendant des cycles de chauffage et de refroidissement (appareil CS-2 couplé à un Kappabridge KLY-2; Fig. III.15) permet de caractériser certains minéraux en fonction de leur température de Curie (Akimoto et al. 1957) et leur taille (Muxworthy 1999, Gonzalez et al. 1997). Pour ce faire, un dispositif tubulaire contenant l'échantillon (en poudre) est introduit dans le solénoïde du susceptomètre. Il permet soit de chauffer l'échantillon jusqu'à 700°C, soit de le refroidir jusqu'à la température de l'azote liquide (-196,6°C). Un thermocouple est associé à l'unité de contrôle. Quelques milligrammes de poudre sont placés dans un tube de silice, contre le thermocouple. Notons ici, que cette mesure de susceptibilité se fait à l'air, et donc en milieu susceptible d'oxyder les oxydes de fer vers le pôle hématite. On peut également effectuer ces mesures sous argon, ce qui permet de minimiser ces transformations minérales, en particulier pour les roches sédimentaires.



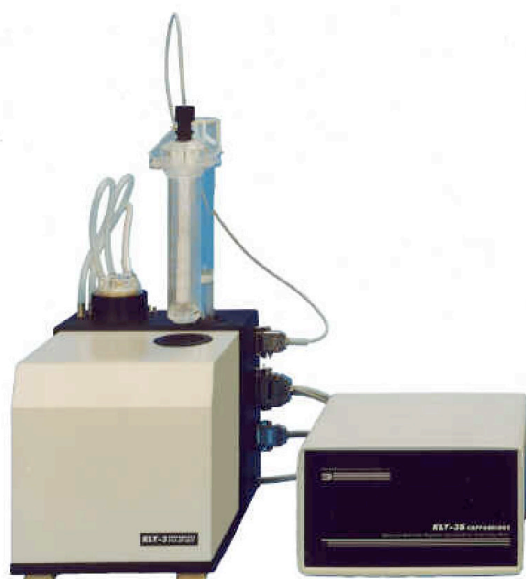


Figure III.15: Dispositif CS-3 (four)-CSL (cryogénique) couplé au susceptomètre KLY-3 (document Agico; www.agico.com).

Voici quelques courbes thermomagnétiques qui serviront de référence à mes résultats (Fig. III.16, 17 & 18). La magnétite présente une température de Curie de 580°C (Fig. III.16a). Celle-ci diminue lorsque la teneur en Ti augmente (Fig. III.16b) jusqu'à l'ulvospinelle où elle est de -153°C (O'Reilly, 1984). De plus, la magnétite montre une transition de phase entre -163° et -152°C, (transition de Verwey), particulièrement prononcée pour la magnétite polydomaine pure (Muxworthy 1999; Fig. III.16a&b).

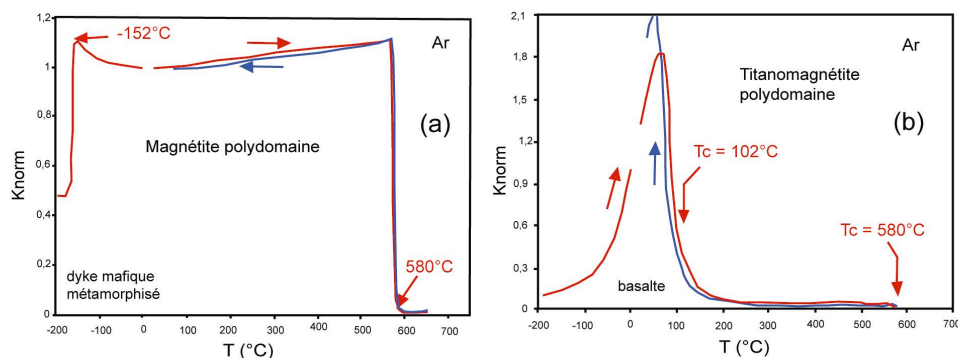


Figure III.16: Courbes de susceptibilité magnétique en fonction de la température (= thermomagnétique), réalisées sous argon. (a) Magnétite polydomaine montrant une transition de Verwey bien prononcée à -152°C et température de Curie à 580°C. La bonne réversibilité de la courbe de chauffage pendant le refroidissement indique que la magnétite est stable et l'unique minéral magnétique "actif" (in Kontny and de Wall, 2000). (b) Un échantillon de basalte dont le comportement magnétique est fortement dominé par la titanomagnétite MD. La forme symétrique de l'enregistrement autour de 65°C est typique de ce type d'échantillon. La température de Curie de 102°C correspond à une titanomagnétite de composition $x_{mt} = 0,34 \pm 0,02$ (mesurée à la microsonde électronique). In: www.geopal.uni-hd.de/tectonic/maglab/atlas/meth.html, Université de Heidelberg.

3 – Principes et méthodes en magnétisme des roches

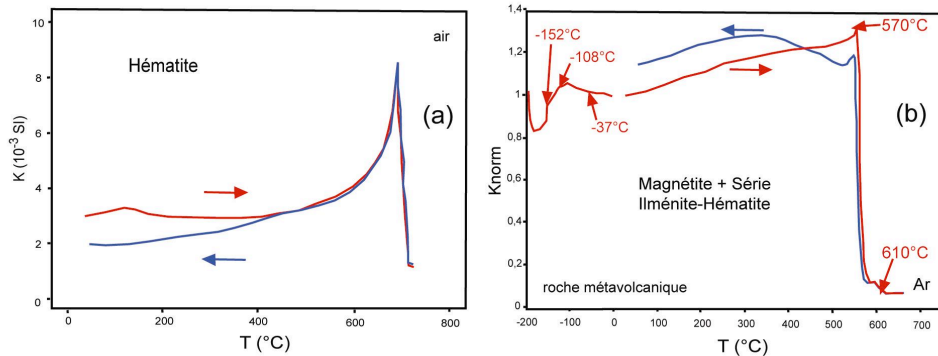


Figure III.17: Courbes thermomagnétiques de (a) l'hématite pure, montrant une température de Curie de 675°C (in: site www.agico.com); (b) d'une roche métavolcanique montrant des températures de Curie de la magnétite et des phases de la série ilménite-hématite (in Kontny and de Wall, 2000). Noter les trois "anomalies" de susceptibilité aux basses températures.

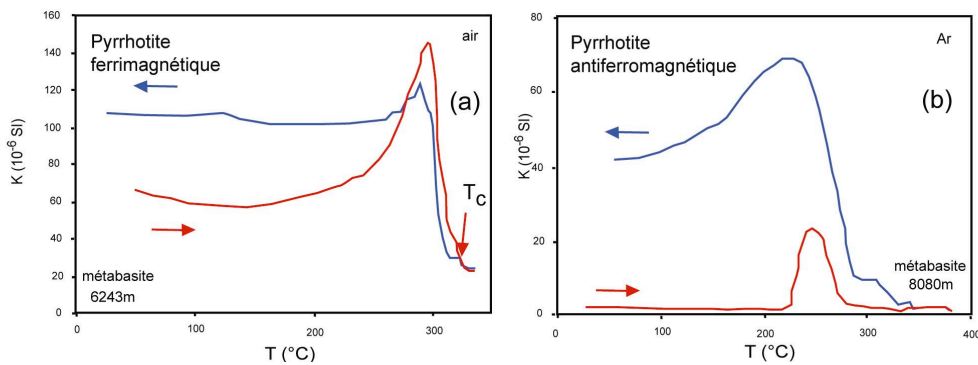


Figure III.18: Diagrammes $K(T)$ de la pyrrhotite: (a) Pyrrhotite de metabasites; (b) Pyrrhotite antiferromagnétique mesurée sous argon. Noter qu'une quantité de pyrrhotite ferrimagnétique se forme au cours du refroidissement (source: www.geopal.uni-hd.de/tectonic/maglab/atlas/meth.html, Université de Heidelberg).

La solution solide ilménite-hématite (Fig. III.17b) possède aussi des températures caractéristiques. La température de Néel (passage d'antiferro- à para-magnétique) de l'ilménite pure est de -213°C , et celle de l'hématite pure est de 675°C , avec une variation à peu près linéaire entre ces extrêmes (O'Reilly, 1984). Dans ce système les processus d'exsolution sont communs, ce qui peut rendre difficile l'interprétation des courbes $K(T)$ (Radhakrishnamurty and Likhite, 1993; Gonzalez et al. 1997). Les courbes $K(T)$ des figures III.17a et III.18a&b montrent des T_c caractéristiques des hématites, pyrrhotites ferri- et antiferro-magnétique.



3.3.2. Aimantation rémanente et désaimantation

L'aimantation rémanente, qu'elle soit naturelle (ARN), résiduelle (i.e. après désaimantation partielle), ou induite (ARA: aimantation rémanente anhystérétique; ou ARI: aimantation rémanente isotherme), a été mesurée au LMTG de Toulouse avec le magnétomètre tournant JR5-A (Agico, inc.), dont la sensibilité est d'environ de 2×10^{-6} A/m (Fig. III.19). L'échantillon est placé à l'intérieur du porte-échantillon (vitesse constante de rotation d'environ 90 tours par seconde) et on mesure la composante, perpendiculaire à l'axe de rotation, du vecteur porté par ses minéraux rémanents (Fig. III.19). Le JR5-A permet à l'échantillon de passer automatiquement à un autre axe de rotation, ce qui, *in fine*, permet de déterminer les trois composantes du vecteur aimantation rémanente.



Figure III.19: Magnétomètre JR5-A et son porte échantillon (a), dans le boîtier contenant les bobines de mesure (b).

La mesure de l'ARA d'un échantillon, permet d'obtenir la susceptibilité anhystérétique (χ_{ARA}), le rapport champ appliqué H et l'aimantation acquise M. L'ARA est particulièrement sensible aux minéraux MD puisque plus les grains sont "gros" ($MD \geq 1 \mu m$) plus grand est la susceptibilité anhystérétique (χ_{ARA}) (Maher, 1988).

Les appareils de désaimantation (sous champ alternatif ou thermique) permettent d'étudier la rémanence fossile (paléomagnétisme) alors que ceux qui permettent d'implanter une aimantation sont plutôt utilisés pour étudier la minéralogie. Le désaimanteur/aimanteur que nous avons utilisé (LDA-3, Agico, inc.: AF 1-100mT, 50Hz; Fig. III.20), peut permettre de faire tourner l'échantillon selon plusieurs axes au coeur d'une bobine produisant un champ alternatif (désaimantation AF). Il peut-être associé à un aimanteur sous champ continu, AMU-1A, qui implante simultanément une aimantation parallèlement à l'axe de la bobine sous un champ alternatif dont l'intensité diminue progressivement jusqu'à s'annuler (DC 0-500 μT ; AF 0-100 mT). C'est l'aimantation anhystérétique (ARA).

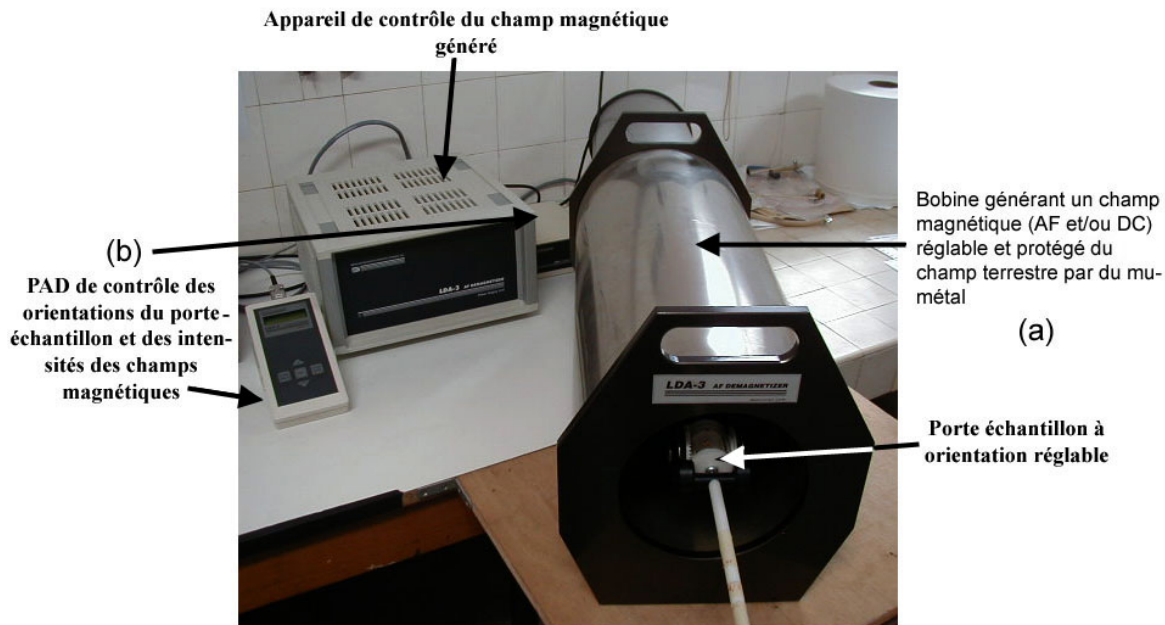


Figure III.20: Le désaimanteur AF LDA-3 de Agico, (a) avec sa bobine génératrice de champ AF, son porte-échantillon et son blindage en mu-métal. L'aimanteur AMU-1A (b) est une autre bobine DC, coaxiale, à l'intérieur de la grande bobine du LDA-3. On voit également le contrôleur de champ et la petite console de contrôle des rotations du porte échantillon et des intensités des champs AF et DC.

Le principe de la désaimantation par champ alternatif (AF: alternative field) a été précisé par As and Zijderveld (1958) et Rimbert (1959). Dans un champ magnétique alternatif H , tous les grains ayant une force coercitive inférieure à $H \cdot \cos\theta$ (où θ est l'angle entre l'axe de facile aimantation et H le champ appliqué) seront aimantables par l'application de ce champ. Il sera donc nécessaire d'appliquer un champ H au minimum dans les trois directions de l'espace (d'où la rotation possible de l'échantillon dans le désaimanteur, Fig. III.20) et de faire décroître progressivement l'intensité de H afin que les grains "remobilisés" acquièrent une aimantation de direction aléatoire. La somme de ces aimantations est alors considérée comme nulle.

La théorie des grains magnétiques placés sous champ alternatif reste toutefois mal comprise (Tarling, 1983) car il est pratiquement impossible de désaimanter complètement une roche par cette méthode. Pour que la désaimantation soit efficace sinon totale, il est également indispensable d'annuler le champ terrestre à l'aide d'un blindage en mu-métal (Fig. III.20) et de s'assurer que les crêtes et pics du champ alternatif soient libres de perturbations, faute de quoi une ARA parasite pourra être acquise.

Les différents types d'aimantation réagissent de façon différente sous l'action d'un champ alternatif. Par exemple, l'ATR (voir § 3.2.5) est en général plus résistante. Tout comme la désaimantation thermique, la progressivité de cette méthode permet d'analyser des aimantations superposées dans un même échantillon. Contrairement à la désaimantation thermique, cette méthode présente l'avantage de ne pas produire de transformation minéralogique.

Le désaimanteur thermique utilisé est un four Schonstedt TSD-1, protégé par un cylindre en mu-métal. Il permet de chauffer jusqu'à 800°C et de refroidir un ensemble d'échantillons sous champ quasi-nul (Fig. III.21).

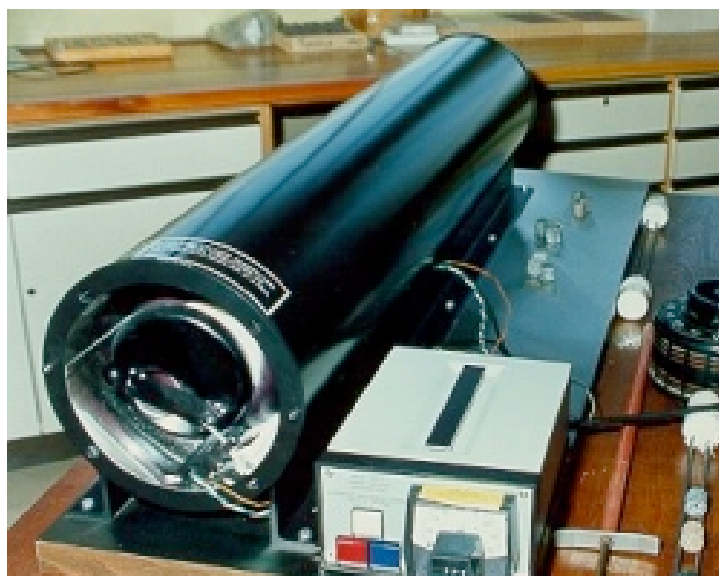


Figure III.21: Le four Schonstedt TSD-1, utilisé pour la désaimantation thermique des échantillons dans l'intervalle 20°C - 800°C, avec une chambre de chauffage et une autre, dans l'axe de la première; pour le refroidissement en champ nul.

Le principe de la désaimantation thermique repose sur les conséquences de la loi d'addition de l'ATR. Un échantillon chauffé à une température T_1 puis refroidi en champ nul sera partiellement désaimanté. En effet, tous les grains possédant une température de blocage inférieure ou égale à T_1 vont perdre leur aimantation rémanente. On recommence l'opération en chauffant l'échantillon à $T_i > T_{i-1}$ jusqu'à la disparition complète de l'aimantation. Cette méthode permet de séparer les composants de basse température, notamment celles de basse coercivité ou visqueuse (ARV), des composantes de plus haute température.

Les inconvénients majeurs sont les transformations minéralogiques inhérentes au chauffage, ainsi que la présence d'un champ parasite résiduel à l'intérieur du blindage amagnétique qui protège le four. La présence d'un tel champ peut entraîner l'apparition d'une ARC ou d'une ARTp (voir chap. III.3.2.5). Afin de minimiser ces risques, le champ résiduel ne doit pas dépasser quelques dizaines de nanotesla. Le problème des transformations minéralogiques est délicat. Des mesures de susceptibilité après chaque palier de température permettent en général de mettre en évidence de tels phénomènes.

Les changements de direction du vecteur aimantation d'un échantillon durant les désaimantations (AF, thermique) fournissent des indications sur l'enregistrement du champ aux différentes époques géologiques selon la coercivité des minéraux présent, c'est-à-dire selon la nature et la taille des grains magnétiques de l'échantillon. Les changements de direction peuvent être représentés sur un canevas de Wülf ou de Schmidt, et les changements d'intensité dans un diagramme bidimensionnel intensité en fonction de T (ou champ AF), selon le traitement utilisé (voir Chap.III. 3.3.5). Deux diagrammes étant requis pour montrer ces deux aspects du vecteur rémanent, Zijderveld (1967) a inventé un diagramme permettant de représenter simultanément les intensités et directions des composantes du vecteur rémanent, en projetant deux plans orthogonaux dans le plan de la figure. C'est maintenant la méthode standard pour présenter les données paléomagnétiques (Fig. III.22).

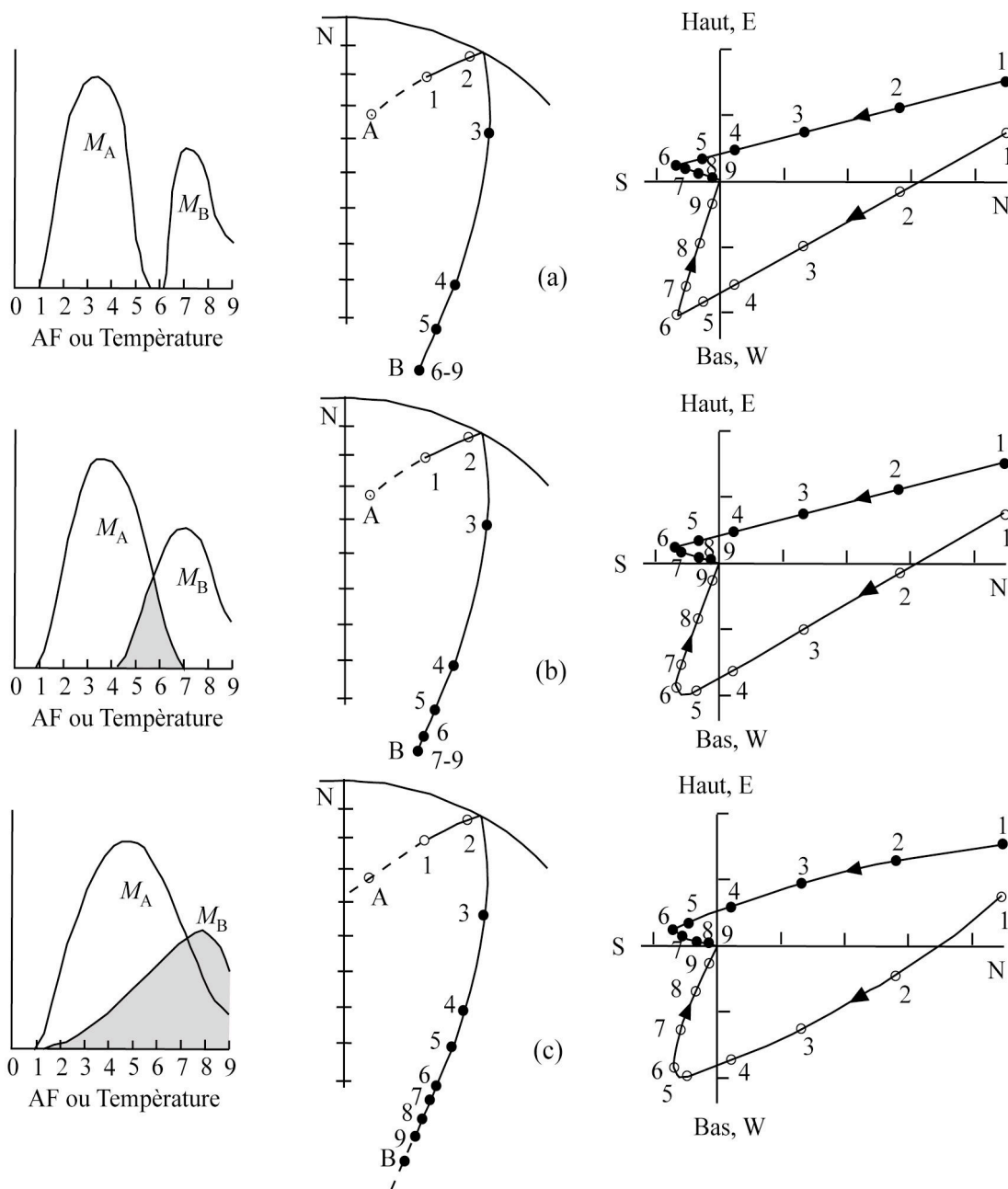


Figure III.22: Représentation des données du paléomagnétisme. A gauche: spectres de coercivité ou de température de blocage (intensité de l'aimantation). Au milieu: stéréogrammes montrant les changements de l'orientation de l'aimantation au cours d'une désaimantation. A droite: diagrammes de Zijderveld correspondants. Pour: (a) des spectres de coercivité sans superposition; (b) avec superposition partielle; et (c) avec superposition totale du spectre. Dans les stéréogrammes, les cercles pleins sont sur l'hémisphère inférieur et les cercles vides sur l'hémisphère supérieur. Dans les diagrammes de Zijderveld les cercles pleins sont sur le plan horizontal et les cercles vides sur le plan vertical (In Dunlop, 1979).



Les aimantations artificielles sous champ fort DC ont été appliquées grâce au "pulse magnetiser" MMPM10 (Fig. III.23) capable de générer des champs de courte durée allant jusqu'à 2,5T pour les échantillons de taille standard et jusqu'à 9T pour de petits échantillons (~1cm de diamètre).



Figure III.23: L'implanteur d'aimantation sous champ fort MMPM10. Col A pour les échantillons de 1 pouce de diamètre; Col B: pour les échantillons de quelques millimètres de diamètre (www.magnetic-measurements.com).

En appliquant progressivement un champ DC de plus en plus fort et en mesurant la rémanence induite entre chaque palier, il est possible de construire la courbe d'acquisition d'aimantation rémanente isotherme (ARI) et dont sa dérivée nous donne le spectre de coercivité (Fig. III.22). L'ARI permet d'évaluer la présence de certains minéraux en fonction de leur aimantation à saturation (SARI ou SIRM en anglais), ce qui permet alors d'estimer la concentration en minéraux de haute et basse coercivité (Egli, 2003). Le rapport-S comptabilise la rémanence résiduelle après application d'un champ à 1 ou 2T (SARI) selon une direction (généralement celle de l'axe de l'échantillon +z) puis après application d'un champ plus faible (100 ou 300 mT) selon la direction opposée (-z) pour enlever les effets des minéraux de basse coercivité. Ce paramètre S évalue donc la contribution des minéraux de haute coercivité vis-à-vis de la rémanence totale.

$$S = \frac{1}{2} \left[\frac{1 - ARI(-0,3T)}{SARI(2T)} \right]$$

Certains auteurs (Bloemendal et al., 1992; Demory et al., 2005) ont utilisé ce paramètre et l'ont modifié en:

$$HARI = \frac{[SARI(2T) + ARI(-0,3T)]}{2}$$

paramètre qui représente directement la concentration des minéraux de haute coercivité ou bien, selon Bloemendal et al. (1992), la concentration en magnétite d'origine éolienne dans des sédiments, ou encore l'effet de la dissolution des magnétites qui deviennent de plus en plus SD et (donc de plus en plus coercitives) dans les roches sédimentaires (Demory et al., 2005).

Le test de Lowrie (Lowrie, 1990) consiste à appliquer dans trois directions orthogonales (x, y et z) d'un échantillon trois champs d'intensités distinctes de manière à distinguer les domaines de coercivité de ses minéraux. Les champs DC appliqués sont généralement de 100 mT selon +x pour la fraction de basse coercivité, de 400 mT selon +y pour la fraction de moyenne coercivité, et de 1200 mT selon +z pour la fraction de plus haute coercivité. La perte de la rémanence selon ces trois axes d'implantation au fur et à mesure qu'on chauffe par paliers successifs permet d'identifier les températures de déblocage et donc d'assigner la présence de certains minéraux.

Les techniques sous champ et à basse température nécessitent un magnétomètre SQUID (superconducting quantum interference device) capable de mesurer de très faibles aimantations (nous avons utilisé celui du LCC de Toulouse) ainsi que d'appliquer un champ au cours de la descente à très basse température (Fig. III.24). On mesure d'abord la rémanence au cours du refroidissement, sans champ appliqué (Zero Field Cooled, ZFC). Puis, après remontée de la température jusqu'à l'ambiante, on refroidit à nouveau en appliquant maintenant un champ DC de 2,5 T (Field Cooled, FC), toujours en mesurant la rémanence. Pendant les phases de descente en température, des variations de la rémanence peuvent apparaître en fonction des transitions du réseau cristallin (transition de Verwey pour la magnétite, de Morin pour l'hématite) et donc caractérisant la minéralogie. Moskowitz et al. (1989 et 1993) ont montré que la comparaison ZFC-FC pouvait fournir un critère de distinction des magnétites d'origine organique ou détritique (Fig. III.24). La courbe FC est souvent au-dessus de la courbe ZFC pour les magnétites bactériennes, et inversement pour les magnétites détritiques. Oldfield (1994) a proposé en outre de comparer χ_{ARA}/χ_{FD} (où FD est la dépendance à la fréquence) en fonction χ_{ARA}/k où les magnétites détritiques gardent des valeurs basses et les magnétites d'origine bactérienne possèdent de fortes valeurs (Fig. III.24).

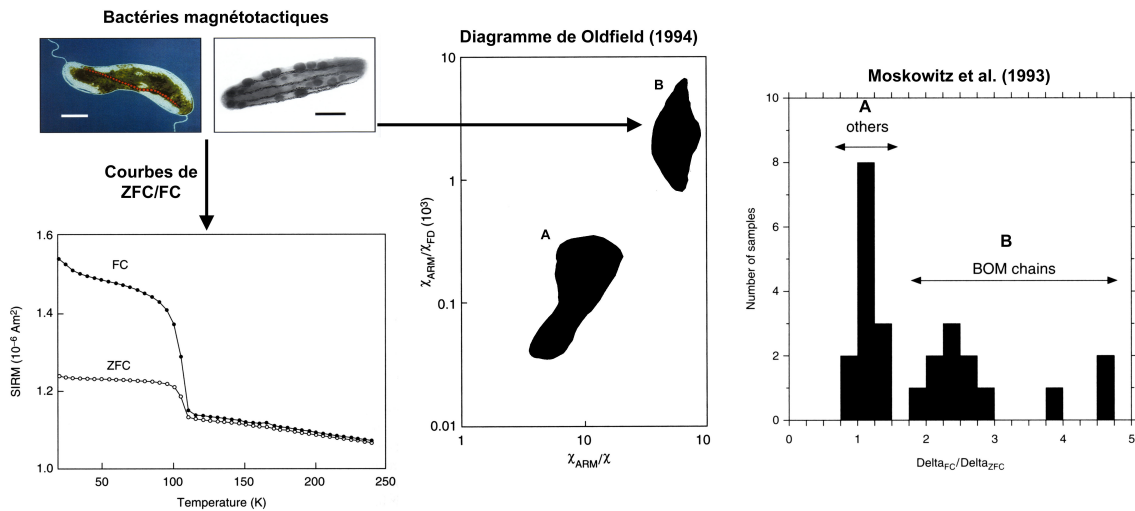


Figure III.24: Diagramme de ZFC/FC (Moskowitz et al., 1993) et χ_{ARA}/χ_{FD} en fonction de ARA/K (Oldfield, 1994) permettant de distinguer entre magnétite d'origine détritique (A) et magnétite d'origine organique (B). Les magnétites d'origine biologique, BOM (Boundary Organised Mineralization) sont obtenues par synthèse intracellulaire, et formes donc des chaînes le long de la bactérie. $\Delta\chi_{ZFC}$ ou $\Delta\chi_{FC} = (M_{x^\circ K} - M_{300^\circ K})/M_{300^\circ K}$ où M est la magnétisation de la courbe ZFC ou FC pour une température donnée x en Kelvin (K).



L'ensemble de ces appareils pour les mesures et traitements d'aimantation et de désaimantation est placé dans une cage "amagnétique" (Fig. III.25) qui permet de s'affranchir du champ magnétique terrestre pouvant ré-aimanter les échantillons durant les désaimantations.

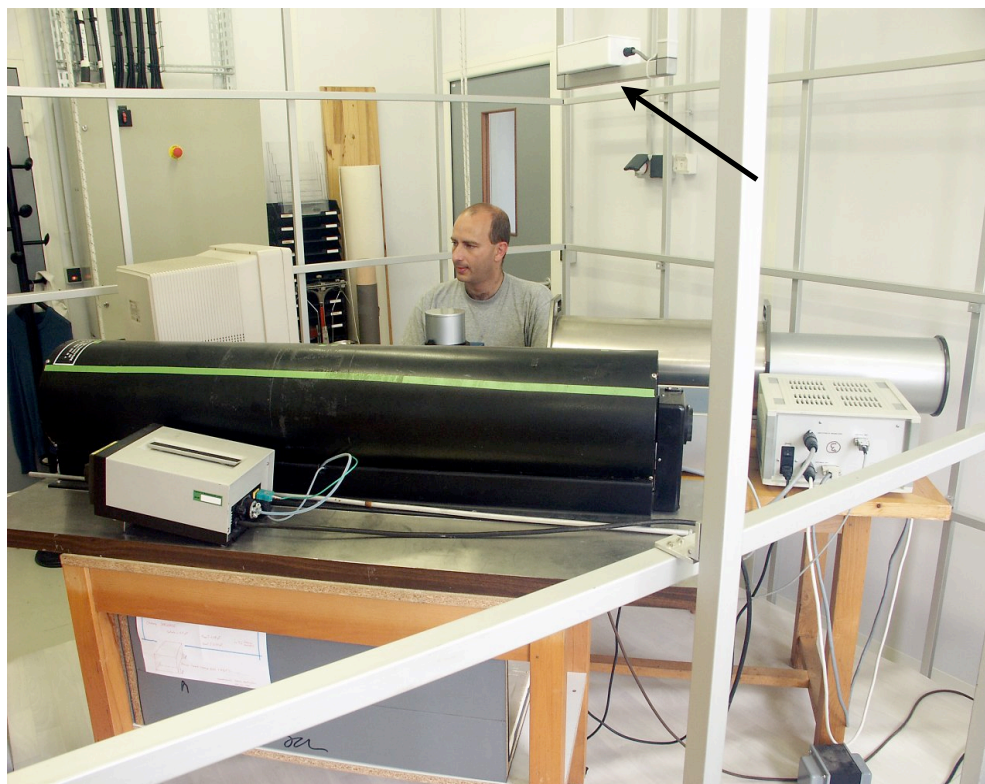


Figure III.25: Cage amagnétique construite par J. Shaw (www.magnetic-measurements.com) gérée par un magnétomètre fluxgate central (flèche) capable de compenser, à $\sim 0,1$ % près, le champ magnétique terrestre externe (terrestre et/ou artificiel). Personnage: Roberto Siqueira, ingénieur CNRS du LMTG (Toulouse).

3.3.3. Taille de grain et hystérésis

La comparaison de divers paramètres (Chap. III. §3.3.1 & 3.3.2) est utilisée pour déterminer/quantifier la taille des grains magnétiques. Le paramètre ARA/SARI (Maher, 1988; Dunlop and Xu, 1993; Dunlop, 1995; Evans and Heller, 2003) sert à estimer la concentration de minéraux magnétiques de petite taille (SD). L'ARA (Chap. III.3.3.2 & 3.3.5) ne s'enregistre pas avec la même intensité selon que le grain est SD ou MD (ou PSD), puisque le champ appliqué aimante plus facilement un MD qu'un SD. Cette rémanence ARA, normalisée à la quantité de minéraux ferrimagnétiques (SARI), donne donc un [ARA/SARI] important pour des SD ($\sim < 1 \mu\text{m}$), qui diminue quand la taille du grain augmente. De façon semblable, le rapport [SARI/K] souligne le même caractère, avec de fortes valeurs pour des échantillons contenant beaucoup de SD. Si les échantillons possèdent des sulfures de fer ferrimagnétiques, et plus précisément de la greigite (Fe_3S_4), les fortes valeurs de SARI/K (Roberts, 1996) caractérisent sa présence.

Les cycles d'hystérésis (Chap. III.3.2.3), déterminés à l'aide d'un magnétomètre à échantillon vibrant (VSM, vibrating sample magnetometer du CEREGE à Aix-en-Provence, Fig. III.26), permettent de mesurer le pourcentage des contributions para- et ferro-magnétiques. Ils peuvent également évaluer la taille des grains ferrimagnétiques en utilisant les paramètres déduits des courbes d'hystérésis et la forme des boucles d'hystérésis (Fig. III.27 & 28; Tauxe, 1998).



Figure III.26: Exemple de Micro VSM (Princeton Measurements Corporation) permet de mesurer l'aimantation en fonction du champ appliqué sur une large gamme de champ ($\pm 1T$).

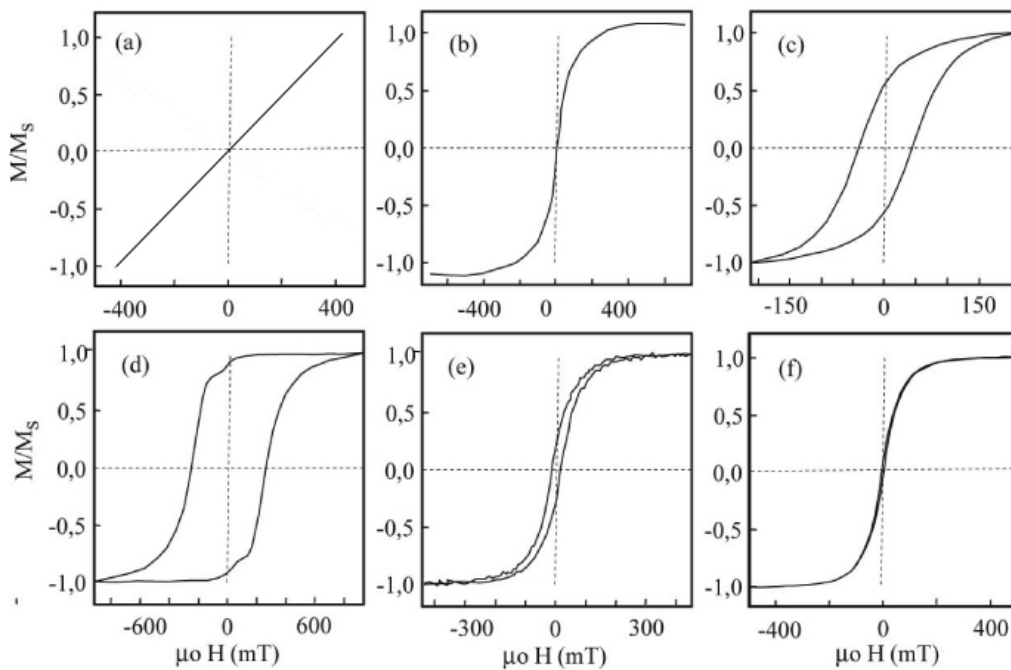


Figure III.27: Boucles d'hystérésis de matériaux différents. Comportement magnétique: (a) paramagnétique; (b) superparamagnétique; (c) de magnétites SD; (d) d'hématites spéculaires; (e) de magnétites PSD; (f) de magnétites MD. In Tauxe (1998).

Ainsi, les boucles d'hystérésis présentent des formes spécifiques pour chaque comportement magnétique. Un matériel paramagnétique montre une droite à pente positive (Fig. III.27a). Quand la taille des grains magnétiques est très petite, l'échantillon peut présenter une hystérésis typique du super-paramagnétisme (Fig. III.27b).

La boucle de la figure III.27c est caractéristique des magnétites SD (avec anisotropie uniaxiale) alors que celle de la figure III.27d est typique d'une hématite spéculaire (avec anisotropie magnéto-cristalline hexagonale dans le plan basal) avec M_{rs}/M_s proche de l'unité. Enfin, les boucles des figures III.27e et f sont dues, respectivement, à des grains de magnétite pseudo-monodomaines et polydomaines.

Les matériaux géologiques montrent souvent des mélanges de plusieurs phases magnétiques et/ou domaines conduisant à des boucles composites. Leurs formes vont du "cou d'oie" (goose-necked) pour un mélange d'hématite et de magnétite monodomaine (Fig. III.28a) à la ceinture de guêpe (wasp-waisted) pour un mélange de magnétites monodomaines et superparamagnétiques, ou bien être plus ou moins ventrues (pot-bellied) (Figs. III.28b et c).

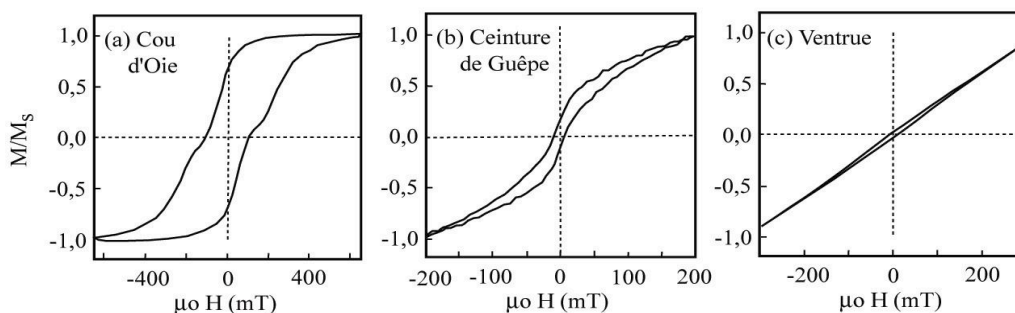


Figure III.28: Boucles d'hystérésis de plusieurs mélanges: (a) magnétite et hématite; (b) magnétite SD et SP; (c) un autre exemple de magnétite SD et SP. D'après Tauxe (1998).

Le diagramme de Day (Day et al., 1977; Fig. III.29a) compare les valeurs M_{rs}/M_s en fonction de H_{cr}/H_c des boucles d'hystérésis. Ce diagramme permet d'estimer la taille des grains, si la magnétite est le principal minéral magnétique. Un $M_{rs}/M_s \geq 0,5$ et $H_{cr}/H_c \leq 2$ caractérise des grains SD (Dunlop and Ozdemir, 1997); $M_{rs}/M_s \leq 0,05$ et $H_{cr}/H_c \geq 5$ caractérisent des grains MD (Fig. III.29b). Les grains superparamagnétiques (SP) ont tendance à décaler le rapport M_{rs}/M_s vers le haut, au-dessus de la zone des MD.

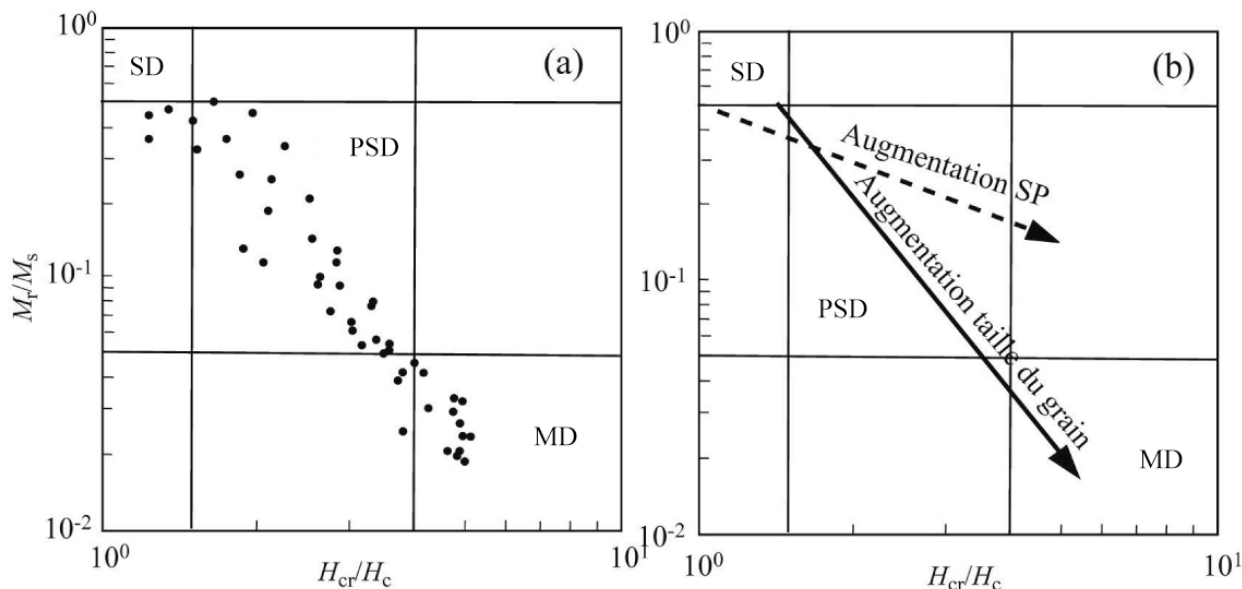


Figure III.29: Diagrammes log-log de M_r/M_{rs} en fonction de H_{cr}/H_c . (a) Rapports d'hystérésis de magnétites de taille connue avec limites de comportements SD, PSD et MD indiqués (Day et al., 1977); (b) Comparaison des tendances de boucles simulées à partir de populations de magnétites simple domaine et superparamagnétiques (Tauxe et al., 1996; Dunlop, 2002a&b) avec celles mesurées de populations de magnétite de taille de grain connue, de Day et al. (1977).

Le diagramme de King peut aussi fournir une évaluation de la taille des grains de magnétite en comparant χ_{ARA} en fonction de K (Fig. III.30). Les SD auront des pentes = χ_{ARA}/K plus fortes que les MD, et la résolution sur la valeur de cette pente (i.e. précision sur la taille) sera d'autant meilleure que les grains seront petits.

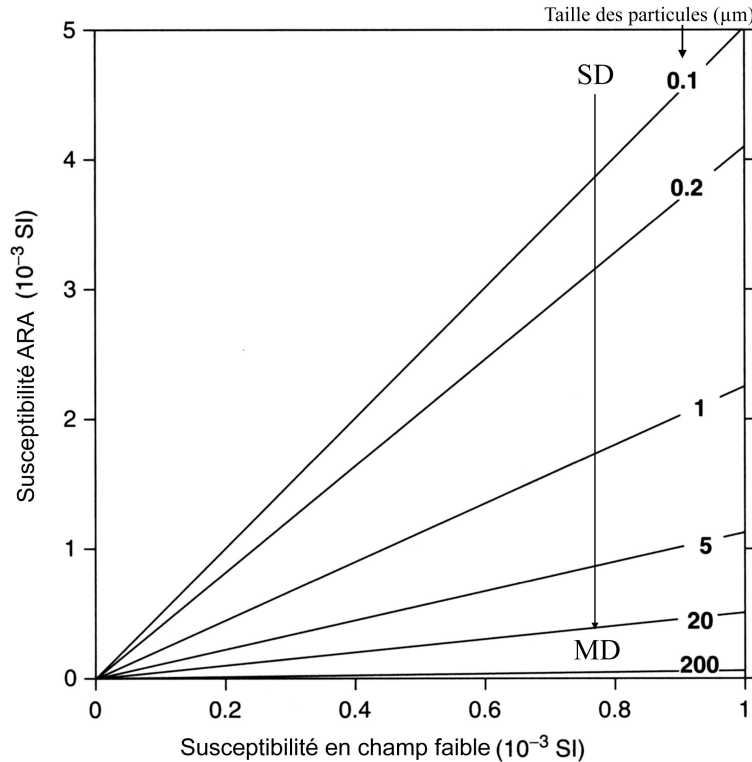


Figure III.30: Relation entre susceptibilité de l'ARA (χ_{ARA}) et susceptibilité en champ faible (K), pour des particules de magnétite de différentes tailles (en μm ; adapté de King et al., 1982 dans Evans and Heller, 2003).

3.3.4. Anisotropies magnétiques

Dans cette étude, deux types d'anisotropie magnétique seront utilisés, l'anisotropie de la susceptibilité magnétique (ASM) et l'anisotropie de l'aimantation rémanence anhystérétique (AARA). L'ASM reflète l'organisation de tous les minéraux magnétiques (para- et ferro-magnétiques) alors que l'AARA ne reflète que la fabrique des grains ferromagnétiques puisque l'ASM est mesurée "pendant" et l'AARA "après" l'action d'un champ externe sur l'échantillon.

Si les matériaux sont anisotropes, l'aimantation acquise n'est pas parallèle à la direction du champ appliqué. La susceptibilité magnétique K devient un tenseur d'ordre 2, décrit par une matrice 3x3. Le susceptomètre KLY3 (Fig. III.13) mesure automatiquement et plusieurs fois la susceptibilité d'un échantillon au cours de sa rotation autour de chacun des trois axes orthogonaux. Cet ensemble de mesures permet de déduire les termes diagonaux et symétriques du tenseur de l'ASM. La manipulation de cette matrice permet d'obtenir les trois vecteurs propres correspondant aux trois axes principaux de l'ellipsoïde d'ASM ($K_1 \geq K_2 \geq K_3$) et leurs intensités. K_1 est l'axe long de l'ellipsoïde, ou encore linéation magnétique, K_2 est l'axe intermédiaire, et K_3 est l'axe court et représente la normale au plan de foliation magnétique (Fig. III.31). Ces trois composantes permettent de calculer les paramètres scalaires de l'ASM qui décrivent la pétrofabrique (Hrouda, 1982; Rochette et al., 1992; Bouchez, 2000).



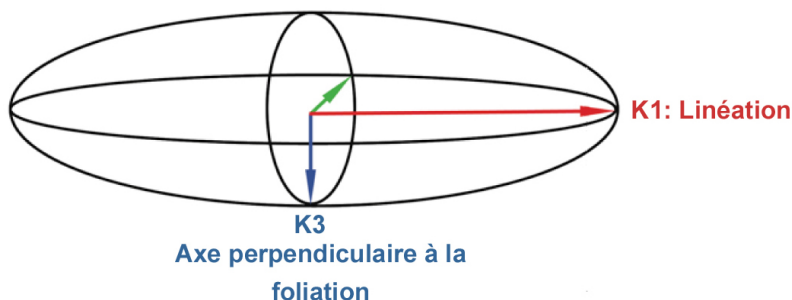


Figure III.31: Les trois axes de l'ellipsoïde d'ASM.

L'anisotropie linéaire L , ou rapport K_1/K_2 , quantifie l'allongement de l'ellipsoïde dû à la tendance des minéraux magnétiques à s'aligner selon une direction privilégiée. L'anisotropie planaire F , ou rapport K_2/K_3 , mesure la tendance des minéraux à s'organiser selon un plan moyen (de schistosité ou de foliation). Le degré d'anisotropie P , ou rapport K_1/K_3 , mesure l'intensité totale de cette anisotropie. Le paramètre de Jelinek (T ; Jelinek, 1977) mesure la forme générale de l'ellipsoïde de l'ASM et se calcule par:

$$T = \frac{2\ln(K_2) - \ln(K_1) - \ln(K_3)}{\ln(K_1) - \ln(K_3)}$$

où K_1 , K_2 et K_3 représentent les susceptibilités des 3 axes de l'ellipsoïde d'ASM.

Dans les sédiments, l'anisotropie est essentiellement contrôlée par la compaction, l'axe minimum (K_3) étant sub-vertical (Tarling and Hrouda, 1993). La présence d'un allongement (K_1) dans le plan de compaction peut indiquer des directions de paléocourants fluviaux ou marins (Ellwood and Ledbetter, 1979).

La mesure de la fabrique des seuls minéraux ferrimagnétiques s'obtient par la mesure de l'AARA, qui demande plus de temps à obtenir que l'ASM. L'échantillon est successivement aimanté et désaimanté dans six positions différentes (C1 à C6) ou plus, si on désire une meilleure "qualité" du tenseur (Trindade et al., 2000). De façon plus fine encore, on peut s'intéresser à l'AARA "partielle", c'est-à-dire à l'AARA de l'échantillon limitée à une "fenêtre de coercivité" des minéraux ferrimagnétiques. Par exemple, pour une fenêtre 20-100 mT, on applique un champ de 100 mT selon C1 et on le désaimante à 20 mT. L'intensité de la rémanence est, à chaque fois, mesurée avec le magnétomètre JR5-A. Ceci conduit à construire, in fine, chacun des trois axes principaux de l'anisotropie de rémanence.

3.3.5. Statistiques et calcul d'erreur en magnétisme des roches

3.3.5.1. Analyses statistiques de l'ASM

Les valeurs K_i d'un site d'échantillonnage représenté par la mesure de n tenseurs d'anisotropie (n échantillons) sont obtenues directement par la moyenne tensorielle des n tenseurs individuels.

Les analyses statistiques des données des mesures d'orientation d'ASM reposent sur l'estimation de la qualité des K_i (ou ellipses d'erreur). Ces estimations de qualité peuvent être calculées soit par la méthode de Fisher (base vectorielle; Fisher et al., 1987) soit par des méthodes tensorielles beaucoup plus précises avec la méthode de Hext (Hext, 1963) ou la méthode de Jelinek plus sophistiquée (Jelinek, 1976, 1978) ou, tout récemment développé par Constable and Tauxe (1990) et qui est utilisée dans ce manuscrit: la méthode de bootstrap (simulation).

Cette méthode de bootstrap analyse numériquement la distribution des directions et des intensités des axes d'ASM des échantillons individuels (<http://earthref.org/MAGIC/books/Tauxe/2005/lecture.13.htm>); par une approche de Monte-Carlo. Elle calcule de façon répétée la moyenne de plusieurs données prises aléatoirement dans la base de données de départ et estime les domaines de confiance des données. Cette méthode est d'autant meilleure que la base de données est importante. Les diagrammes d'orientation (Fig. III.32) montrent les moyennes "bootstrappées" produites par cette méthode le long des axes de dispersions 2D des ellipses de confiance ainsi que les histogrammes de fréquence des valeurs des axes du tenseur du "bootstrap".

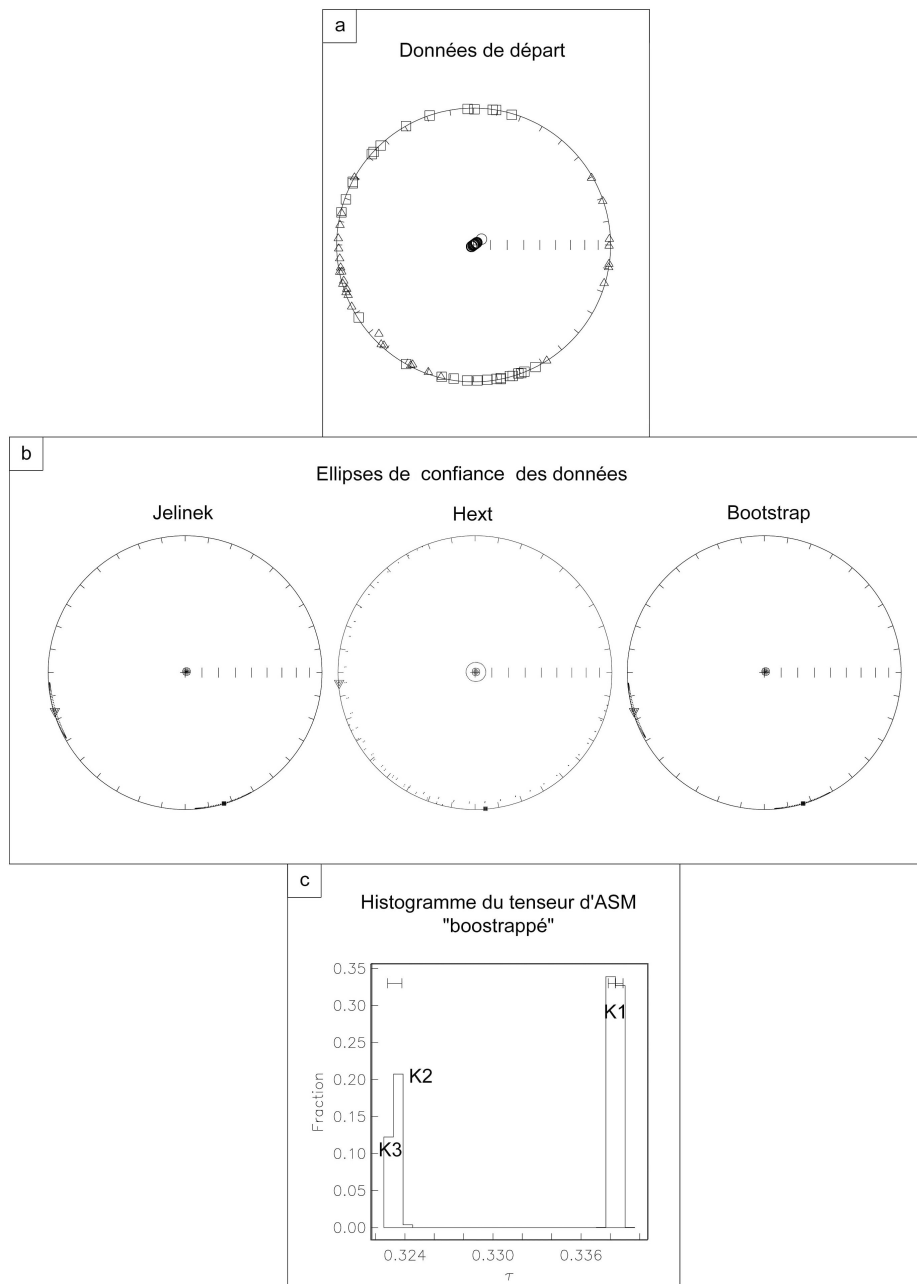


Figure III.32: Diagrammes d'analyse statistique de l'ASM. (a) Données d'ASM avec K1 pour les carrés, K2 pour les triangles et K3 pour les ronds; (b) Ellipses de confiance après analyse avec les méthodes de Jelinek, de Hext et de bootstrap; (c) Histogramme des fréquences des valeurs propres du tenseur d'ASM après traitement de bootstrap.

3.3.5.2. Analyses des coercivités des roches

La distribution de la coercivité (i.e. des populations de tailles de grains dans la roche) est analysée par la dérivée première de la courbe d'aimantation (et/ou de désaimantation).

Les caractères de la distribution ainsi obtenue peuvent-être définis par une loi de probabilité de distribution (Egli, 2003; 2004) qui est fonction de (1) la distribution des tailles de grains dans la roche; (2) la coercivité de tous les grains; (3) des interactions magnétostatiques (souvent négligées, s'il n'y a pas trop de grains MD; Stoner and Wohlfarth, 1948; Xu and Dunlop, 1995). Cette loi de distribution est une courbe gaussienne en échelle logarithmique, définie par des paramètres réglables et permet de caractériser une population de grains (ou composante magnétique) ayant "généralement" les mêmes origines et histoires biogéochimiques (mêmes processus de formation, nucléation, nature...).

Dans la nature, pour les roches qui ont au moins 2 composantes (i.e. 2 types de population de grains), les premiers travaux ont été réalisés par Robertson and France (1984) et montrent un mélange de grains à distribution log-gaussienne et, par la suite, prouvent que les distributions des composantes se répartissent sur une échelle logarithmique (Egli, 2004; <http://www.meteo.be/CPG/aarch.net/magmix.man.pdf>). Nous utilisons donc une échelle logarithmique pour l'analyse des coercivités obtenues par désaimantation AF, via l'écriture d'une macro dans Microsoft excel pour modéliser une courbe "somme" des populations de grains dont on peut régler le nombre, la taille, l'intensité... pour ajuster au mieux la courbe de mesure. Les aimantations DC obtenues par ARI sont analysées plus spécifiquement par le logiciel IRMUNMIX disponible sous le lien www.geo.uu.nl/~forth/software/irmunmix/index.html, qui permet de régler via différentes analyses (résidus, échelle logarithmique, gradient) l'ajustement à la courbe de mesure.

3.3.6. Mécanismes d'acquisition de l'aimantation dans les roches sédimentaires marines

Les sédiments marins font parties des matériaux naturels très étudiés en magnétisme, en particulier pour leur minéralogie complexe et leur variabilité (Henshaw and Merrill, 1980) et aussi pour la corrélation qui existe entre propriétés magnétiques et fluctuations climatiques de l'isotope de l'oxygène des micro-organismes marins (Lean and McCave, 1998). Les travaux de Stoner et al. (1995a, 1996) ont montré les relations qu'il y a entre paléoclimat et signature magnétique, en termes de changement environnemental, d'abondance et de taille des magnétites. Les mesures magnétiques à haute résolution en mer du Nord, effectuées pour l'exploration des hydrocarbures, ont enregistré les variations de l'épaisseur de la couverture de glace dans l'hémisphère Nord. Les aspects biochimiques (Bazylinski and Moskowitz, 1997), chimiques, détritiques et mécaniques (compaction) qui ont joué pendant le dépôt des sédiments, puis leur diagenèse, pour former la roche sédimentaire, ont tous des implications sur leurs propriétés magnétiques.

Les minéraux ferromagnétiques détritiques contenus dans les sédiments proviennent, pour la plupart, des roches ignées contenant des (titano)-magnétites, (titano)-hématites, pyrrhotites ou bien peuvent se former in-situ en fonction des conditions redox, comme la greigite, la goethite ou l'hématite. Tous ces minéraux présentent une large gamme de compositions chimiques et de tailles de grain. Les minéraux détritiques peuvent être apportés par le vent et/ou par les courants marins.

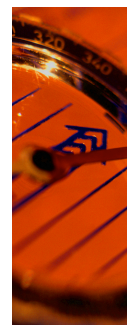
Pendant le dépôt de ces particules et avant lithification, les grains magnétiques les plus petits peuvent s'aligner parallèlement au champ magnétique terrestre et acquérir une aimantation rémanente détritique (ARD, voir III.3.2.5). Puis, il y a l'induration du sédiment par compaction et évacuation d'eau, avant la diagenèse sensu-stricto.

Les facteurs contrôlant l'ARD sont la distribution des grains, la nature de la matrice sédimentaire, le taux de sédimentation, la bioturbation (Guinasso and Schink, 1975; Hyodo, 1983; Bleil and von Dobeneck, 1999). Il peut y avoir influence de la gravité, du champ magnétique, des mouvements visqueux du sédiment, des courants, de la porosité et de la circulation de l'eau porale. Dans un apport terrigène de particules très fines (argiles), l'ARD peut-être partielle (pARD) et se bloquer pendant la sédimentation (Clément et al., 1996) alors que pour des apports de particules de plus grande taille (silts), cette pARD peut s'effacer sur plusieurs mètres (Spassov et al., 2001, 2003).

La compaction semble ne pas influencer l'ARD mais peut causer de petites erreurs d'inclinaison, ce qui est un problème en paléomagnétisme (Jackson et al., 1991). La variabilité des tailles et des formes de grain et de leurs propriétés magnétiques peut rendre complexe l'interprétation des forces mécaniques contrôlant ce processus.

Le flux particulaire s'enregistre dans le signal magnétique. Il est lié aux changements environnementaux et paléoclimatiques qui influencent le transport fluvial, éolien, glaciaire, les courants marins, l'activité de ces transports, et la quantité et la composition de la fraction détritique. Les particules magnétiques sont plus ou moins diluées dans le sédiment, faisant varier la susceptibilité, la rémanence et d'autres paramètres magnétiques. Ce flux lui-même est lié aux processus d'érosion sur continents émergés, par-exemple lors des périodes froides et arides, avec une végétation peu développée (Thouveny et al., 1994), et où des vents forts peuvent transporter des particules de grandes tailles (Chen et al., 1997).

Les processus chimiques sont également une source majeure du magnétisme des sédiments. Les minéraux ferromagnétiques sont soit pré-existants, issus de l'altération ou de l'oxydation de minéraux pré-existants, soit ils précipitent in-situ (minéraux authigènes) à partir de solutions où le fer est présent. Dans ce dernier cas, la médiation biogénique, à travers des activités bactériennes, peut jouer un grand rôle (Petersen et al., 1986; Hawthorne and McKenzie, 1993). De nombreuses transformations peuvent aussi intervenir à partir de la déshydratation des minéraux (Hedley, 1968), des processus de réduction (Pick and Tauxe, 1991) ou d'oxydation à partir des variations thermiques. Il faut enfin se méfier des conditions locales, qui peuvent être responsables d'importantes variations, comme au cours des premiers mètres d'une colonne sédimentaire où le statut des minéraux contenant du fer, ou celui des échanges de Fe^{2+} - Fe^{3+} , varie énormément. Froelich et al. (1979) ont synthétisé les mécanismes chimiques qui se produisent en fonction de la profondeur dans la colonne sédimentaire (Fig. III.33).



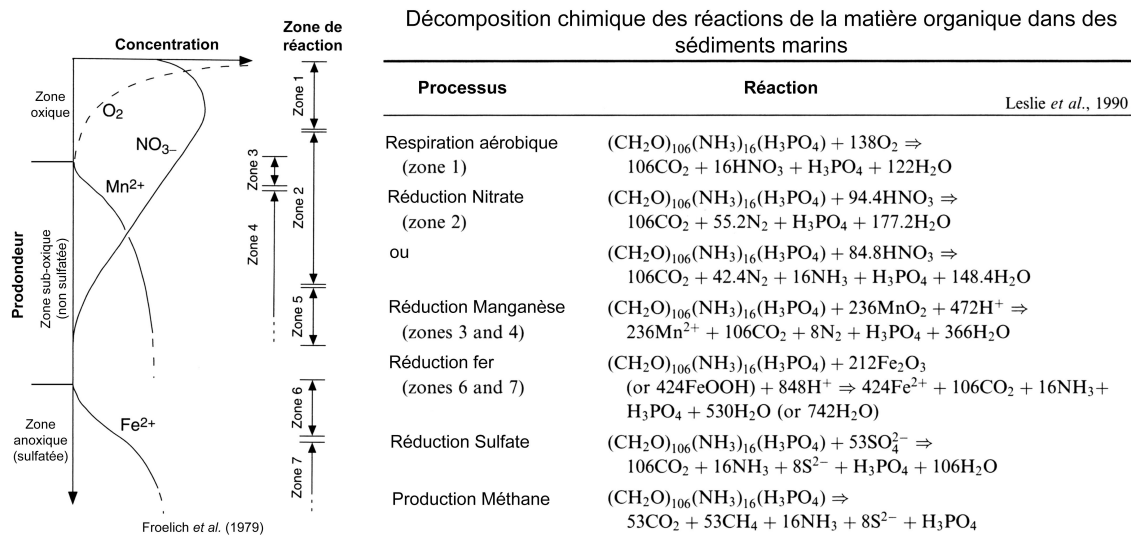


Figure III.33: Représentation schématique des compositions chimiques des réactions typiques qui ont lieu dans une colonne sédimentaire marine (d'après Froelich et al., 1979 et Leslie et al., 1990).

Ces processus de transformation du fer peuvent être expliqués par la chimie inorganique, où l'environnement oxydo-réducteur permet ou empêche la précipitation du fer contenu dans l'eau de la roche, par la chimie organique qui réduit le fer en présence de lumière (Sigg et al., 1991), ou encore par des processus biologiques qui, dans la membrane des bactéries, transforment le fer ou changent l'environnement oxydo-réducteur pour catalyser la précipitation du fer (Bingham, 1996).

Le sédiment, ou la roche sédimentaire, est donc un support complexe qui enregistre une profusion de données sur le milieu, le climat et les transformations physico-chimiques... depuis le début du processus sédimentaire jusqu'au moment de l'étude du matériau.

Chapitre 4

A p p o r t s du magnétisme dans les argilites



Chapitre 4 – apports du magnétisme dans les argilites du Callovo-Oxfordien

Les méthodes du magnétisme des roches ont été appliquées sur des échantillons de divers forages afin de caractériser la minéralogie magnétique des argilites, leur organisation, leur concentration, leur taille, ainsi que toutes les données qui peuvent être extraites par ces méthodes pour nous aider à interpréter ces signaux, en terme de stratigraphie séquentielle, effets climatiques et eustatiques, courants marins...

4.1. Echantillonnage des argilites du Callovo-Oxfordien

Les forages de l'ANDRA sur le site de Meuse/Haute-Marne (Fig. IV.1) fournissent une occasion unique de disposer d'échantillons indemnes des perturbations physico-chimiques et texturales liées à la proximité de la surface. Nous nous intéressons aux argilites de couleur sombre, à minéraux argileux (20-45%), calcite (20-40%), et pouvant contenir une fraction silteuse (20-40%) non négligeable, et dont l'âge va du Callovien à la fin (ou presque) de l'Oxfordien moyen (Pellenard, 2003; Gaucher et al., 2004; Andra, 2005; voir II.2.2.3.). Ces argilites sont collectivement appelées argilites du Callovo-Oxfordien. Cette formation épaisse d'environ 130 m a été échantillonnée plus ou moins régulièrement selon les forages.

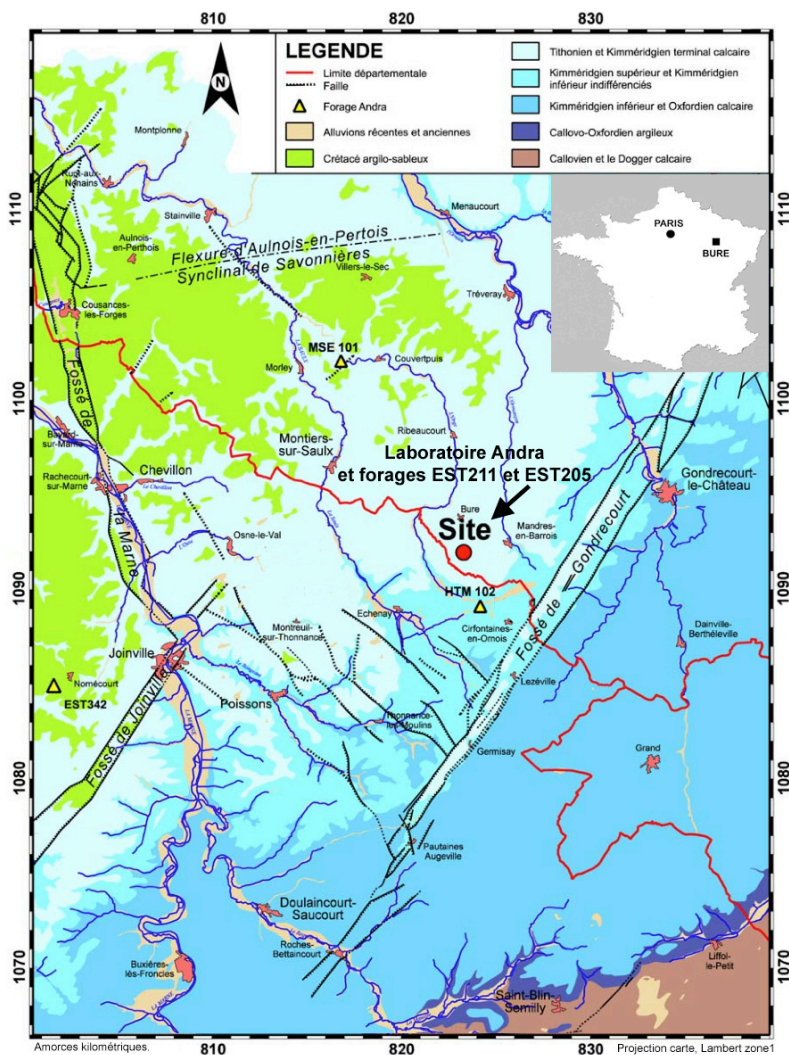


Figure IV.1: Carte de localisation des forages utilisés pour cette étude dans l'Est du bassin Parisien: HTM102, MSE101, EST 205, EST211 et EST342.

Deux forages verticaux de 90 mm de diamètre, MSE101 au Nord-Ouest du site (48° 34' 49,5"N; 5° 16' 32,6"E; z = 260 m au-dessus du niveau de la mer; foré en 1995) et HTM102 (48° 27' 40,9"N; 5° 22' 6,1"E; z = 351 m; foré en 1994) proches du Laboratoire et distant d'une quinzaine de kilomètres l'un de l'autre, ont été échantillonnés au sommet et à la base du Callovo-Oxfordien argileux (Fig. IV.2).

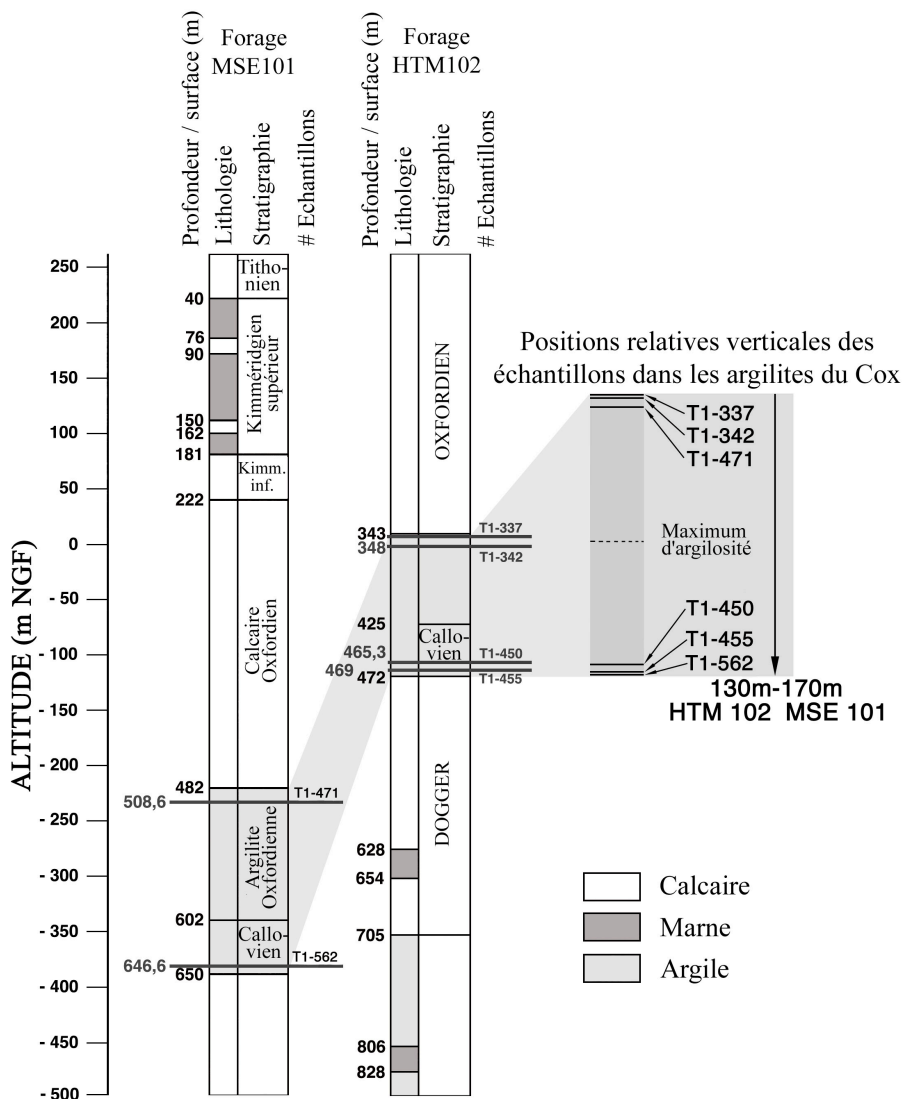


Figure IV.2: Log. géologique des forages HTM102 et MSE101 et localisation des échantillons prélevés. "Cox" correspond au terme Callovo-Oxfordien.

Dans ces deux forages, 6 tronçons d'argilite de 30 cm de hauteur, préservés dans des cellules fermées (T1 de l'Andra, protégeant de la désaturation en eau et sous contrainte uniaxiale), ont été étudiés en début de cette thèse pour tester et calibrer les mesures magnétiques et pétrophysiques (voir aussi Chap. V). Ces tronçons sont: pour HTM102, T1-337 (z = 343 m) et T1-342 (z = 348 m) pour le sommet de la formation, et T1-450 (z = 465 m) et T1-455 (z = 469 m) pour sa base; et pour MSE101, T1-471 (z = 509 m) pour le sommet et T1-562 (z = 647 m) pour la base de la formation.

Ces tronçons ont d'abord été délicatement extraits de leur caisson de contention, puis ont été lentement sciés à sec (perpendiculairement à l'axe du forage) pour éviter l'éclatement de la roche par chauffage et/ou déshydratation. Les disques cylindriques contigus ainsi obtenus, dont la polarité est connue et pour lesquels un azimut commun de référence est arbitrairement choisi, ont ensuite été sur-carottés à sec parallèlement à l'axe du forage (i.e. perpendiculairement au disque) pour fournir des "specimens" de volume environ 10,8 cm³, soit 25 mm de diamètre et 22 mm de hauteur (Fig. IV.3), taille standard des porte-échantillons de nos appareillages. Il a ainsi été obtenu 44 échantillons pour T1-337, 57 pour T1-455, 55 pour T1-562, 53 pour T1-342, 52 pour T1-450 et 55 pour T1-471, avec en moyenne 5 échantillons par disque. La numérotation des divers specimens correspond au numéro du disque de 1 à x (dans la direction de +z) suivie d'une lettre de A à E (une lettre par échantillon, dans un disque).

Notons que l'argilite ne peut être "travaillée" à l'eau, ce qui la plastifierait immédiatement. Malgré nos soins, certains échantillons ont été détruits lors du carottage mais leur nombre est faible (<5%). Toutes les carottes ont été légèrement usées au papier de verre pour enlever les particules magnétiques d'origine extérieure qui se seraient collées lors du carottage ou du sciage, et qui pourraient influencer le signal magnétique qui est particulièrement faible. On a évidemment veillé à ne pas perdre l'orientation de départ (génératrice du tronçon). Enfin une fine pellicule de laque a été vaporisée autour de chaque échantillon pour éviter leur dessèchement, leur fracturation et leur oxydation éventuelle à l'air.

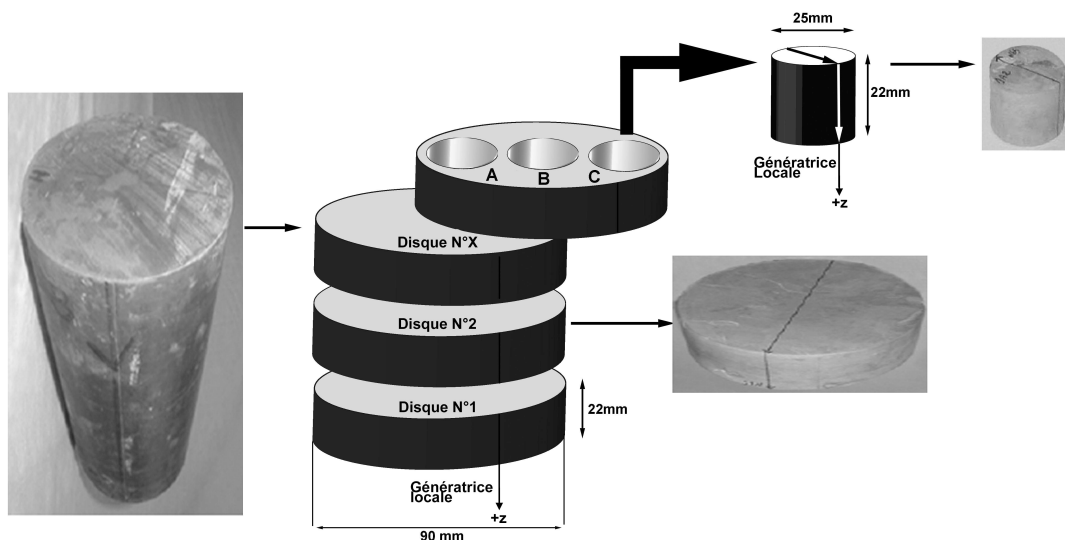


Figure IV.3: Mode préparatoire des mini-cylindres pour les mesures magnétiques.

Après un an d'étude sur les forages verticaux, le forage incliné (de 5 cm de diamètre), EST211, situé à proximité du Laboratoire de l'Andra (48° 29' 06"; 5° 21' 25,49"; z = 368,20m, incliné à ~ 68° selon ~N50° vers le Nord-Est) a été échantillonné tous les 3 à 4 m sous forme de tronçons de 6 cm de hauteur. Ce forage traverse toute la formation argileuse, soit (côte verticale depuis la surface) de 402 m à 554 m de profondeur (Callovien jusqu'à Oxfordien moyen; Fig. IV.4). Ces échantillons ont été emballés dans des sacs de plastique épais et scellés pour les préserver du dessèchement. Ils ont ensuite subi la même préparation que les échantillons des forages verticaux décrits précédemment (Fig. IV.3). Au total, plus de 600 échantillons cylindriques de volume standard (10,8 cm³) ont été extraits de ce forage sur 47 tronçons, avec en moyenne 6 à 9 specimens/disque.

Enfin, dans un but de comparaison d'un forage à un autre, le forage vertical EST342, situé à une vingtaine de kilomètres au Sud-Est du site (Fig. IV.1), a été échantillonné tous les 5 m environ, de la côte 590 m à la côte 646 m. Au contraire du forage incliné EST211, le forage EST342 ne possède ni la fin de l'Oxfordien inférieur ni l'Oxfordien moyen, qui n'ont pas été récupérés lors du forage. Nous avons extrait dans ce forage 200 d'échantillons pour 27 tronçons, avec une moyenne de 7 spécimens/disque (diamètre disque: 5 cm; Fig. IV.4).

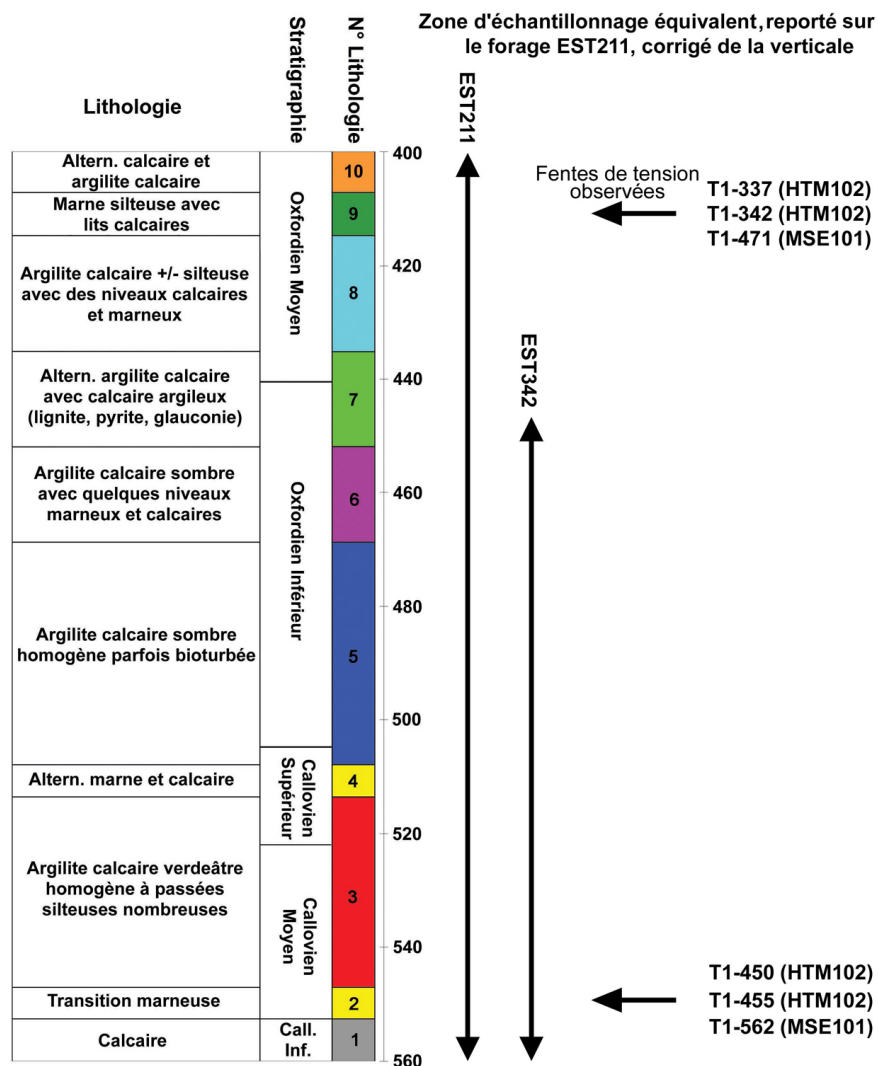


Figure IV.4 : Découpage lithologique et stratigraphique du forage EST211 remis à la verticale, et zone d'échantillonnage des autres forages (EST342, HTM102, MSE101) reportés sur le forage EST211.

4.2. Données lithologiques et séquentielles des forages étudiés

Noter que les profondeurs indiquées se réfèrent toutes à la surface du sol ($Z_{sol} = 0$ m).

Le forage **HTM102** (Fig. IV.5 et 6) est le plus étudié de tous par l'Andra. Il traverse la totalité des argilites qui ont été décrites avec précision d'un point de vue lithologique, sédimentologique, minéralogique et géochimique par Pellenard (2003), et Gaucher et al. (2004). Dans ce forage, les argilites silto-carbonatées callovo-oxfordiennes apparaissent au-dessus de la discontinuité sommitale de la plate-forme du Dogger, à 472 m de profondeur. A 441 m apparaît le premier banc carbonaté du Callovien supérieur.

D'autres bancs calcaires s'intercalent au sein des 6 m d'argilites carbonatées datées du Callovien supérieur. Les dépôts redeviennent ensuite argileux et s'enrichissent en bioturbations pyritisées. Les premiers bancs plus carbonatés réapparaissent vers 385 m puis deviennent de plus en plus fréquents et épais. Dans le même intervalle, les argilites s'enrichissent en fraction détritique plus grossière (quartz). Entre 340 et 320 m, les dépôts alors marneux deviennent de plus en plus carbonatés. Dès 320 m, le faciès devient franchement carbonaté.

La base de la première séquence de dépôt est placée au sommet de la plate-forme du Dogger, à 471 m, et son sommet se situe au niveau du premier banc carbonaté du Callovien supérieur à 441 m. La surface d'inondation maximale est positionnée à 454 m. La seconde séquence se termine à 360 m et sa surface d'inondation est localisée à 417 m. Cette dernière coïncide avec le changement de minéralogie des argiles. La surface d'inondation maximale de la troisième séquence est placée à 343 m. Les échantillons prélevés dans ce forage sont donc caractérisés par une lithologie argilo-carbonatée pour le sommet du Callovo-Oxfordien (T1-337 et T1-342), riche en passées calcaires pour le tronçon T1-337. La base du Callovo-Oxfordien est, pour T1-455 et T1-450, également argilo-carbonatée mais légèrement plus argileuse, correspondant à la zone de transition entre les calcaires du Dogger et les argilites *sensu lato* (Fig. IV.4 et IV.5).

Le forage **EST 205** (Fig. IV.5 et 6) est utilisé comme référentiel lithologique (bien décrit) pour le forage incliné EST211, lui-même quasiment identique au forage HTM102. Ces forages sont très proches les uns des autres, autorisant une même description et des côtes lithologiques et stratigraphiques identiques. Ce forage ne traverse que la partie supérieure des argilites callovo-oxfordiennes. L'intervalle que nous avons échantillonné (mais pas utilisé dans ce manuscrit) s'étend entre 510 m (partie inférieure de la zone à *Mariae*, Oxfordien inférieur) et 415 m de profondeur (zone à *Transversarium*, Oxfordien moyen). Le sommet de la plate-forme carbonatée du Dogger, les dépôts du Callovien et de la base de l'Oxfordien n'ont pas été récupérés dans ce forage EST205. Entre 510 et 460 m, les dépôts sont des argilites silto-carbonatées qui présentent à certains niveaux des bioturbations pyritisées. Les bancs plus carbonatés apparaissent vers 460 m et le faciès devient marneux vers 426 m. La surface d'inondation maximale de la 2ème séquence est localisée vers 573 m et correspond également à la position du changement minéralogique. La surface de transgression sommitale est située vers 436 m et la surface d'inondation maximale de la troisième séquence est placée une dizaine de mètres plus haut.

Le forage **EST 342** (Fig. IV.5 et 6) est le plus méridional de tous les forages considérés ici et traverse la quasi-totalité des argilites. Les argilites silto-carbonatées datées du Callovien moyen ne mesurent que 25 m d'épaisseur. Le premier banc carbonaté du Callovien supérieur apparaît vers 418 m. Les mètres situés au-dessus de ce banc sont des argilites un peu plus carbonatées. Les dépôts redeviennent ensuite argileux et sont plus riches en bioturbations pyritisées que ceux du Callovien. La lithologie devient marneuse vers 560 m et le reste sur une centaine de mètres avant l'installation des faciès carbonatés francs de la plate-forme oxfordienne.

Au point de vue séquentiel, la base de la première séquence de dépôt est placée au sommet de la plate-forme du Dogger à 643 m et son sommet se place au niveau du premier banc carbonaté du Callovien supérieur à 618 m. La surface d'inondation maximale est positionnée à 625 m. La seconde séquence se termine à 544 m. Sa surface d'inondation maximale est localisée à 602 m et correspond une fois encore à un changement de la minéralogie des argiles, similaire à celui observé au niveau de cette même surface sur les autres forages. La surface d'inondation maximale de la troisième séquence est placée vers 508 m, comme le met en évidence le maximum du gammay-ray.

D'un point de vue minéralogique, ce forage se distingue des autres par la présence de deux changements au sein de la première séquence de dépôt. Le premier, qui intervient sur environ 3 m d'épaisseur (636-639 m), se caractérise par une petite diminution de la proportion d'interstratifiés I/S au profit de l'illite et par le remplacement des interstratifiés de type ordonnés (I/S R=1) par des interstratifiés de type désordonnés (I/S R=0). Le second se produit sur 2 m d'épaisseur (620-622 m) et marque la réapparition des interstratifiés de type ordonnés (I/S R=1) au détriment des interstratifiés de type désordonnés (I/S R=0).

Enfin, le forage **MSE 101** (Fig. IV.5 et 6), le plus au Nord, est plus argilo-silteux que les forages situés sur le site et au Sud du site. Il est probablement plus proche des sources d'apports et traverse la totalité des argilites. Les argilites silto-carbonatées apparaissent au-dessus de la discontinuité du sommet de la plate-forme du Dogger, à 650 m. Le premier banc carbonaté du Callovien supérieur apparaît vers 607 m. D'autres bancs calcaires s'intercalent au sein des 7 m d'argilites carbonatées du Callovien supérieur. Les dépôts redeviennent ensuite plus argileux et sont plus riches en bioturbations pyritisées que ceux du Callovien. Les premiers bancs plus carbonatés réapparaissent vers 546 m puis deviennent de plus en plus fréquents et épais. Les argilites s'enrichissent également en quartz vers le sommet. Entre 525 et 518 m, les dépôts sont plus marneux puis redeviennent plus argileux sur une quarantaine de mètres. Ensuite, à partir 385 m, le taux de carbonate augmente très rapidement. Cette apparition brutale des faciès carbonatés francs au-dessus de niveaux argileux diffère de l'installation beaucoup plus progressive de la plate-forme oxfordienne observée sur les autres forages.

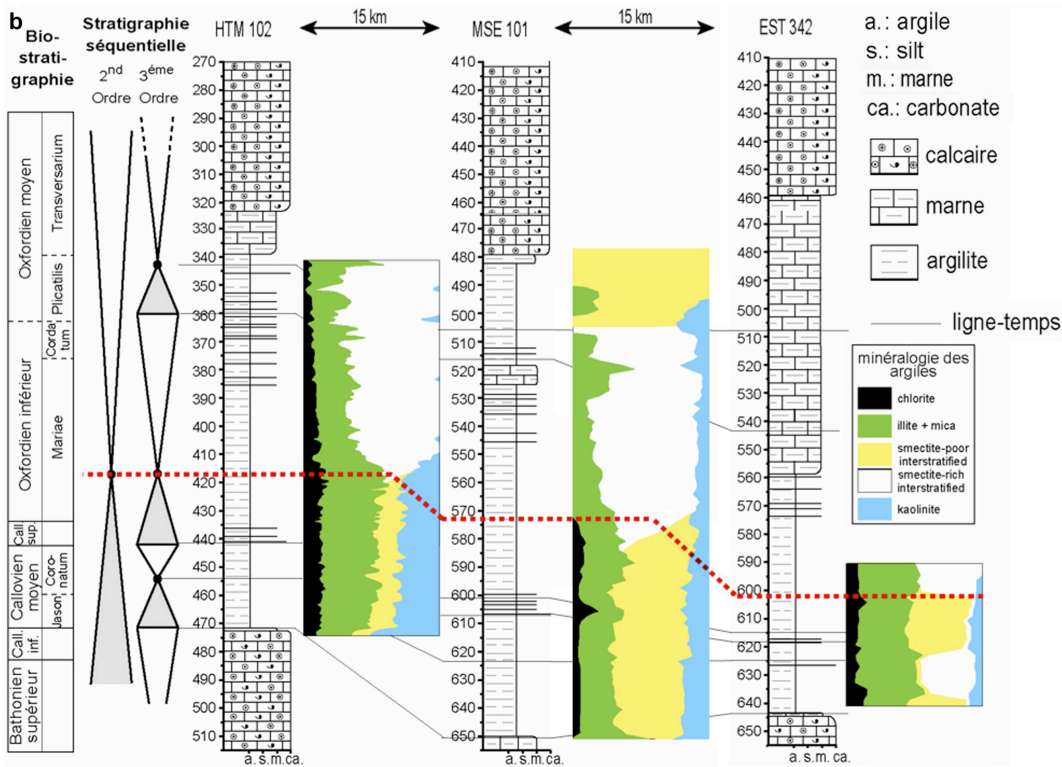
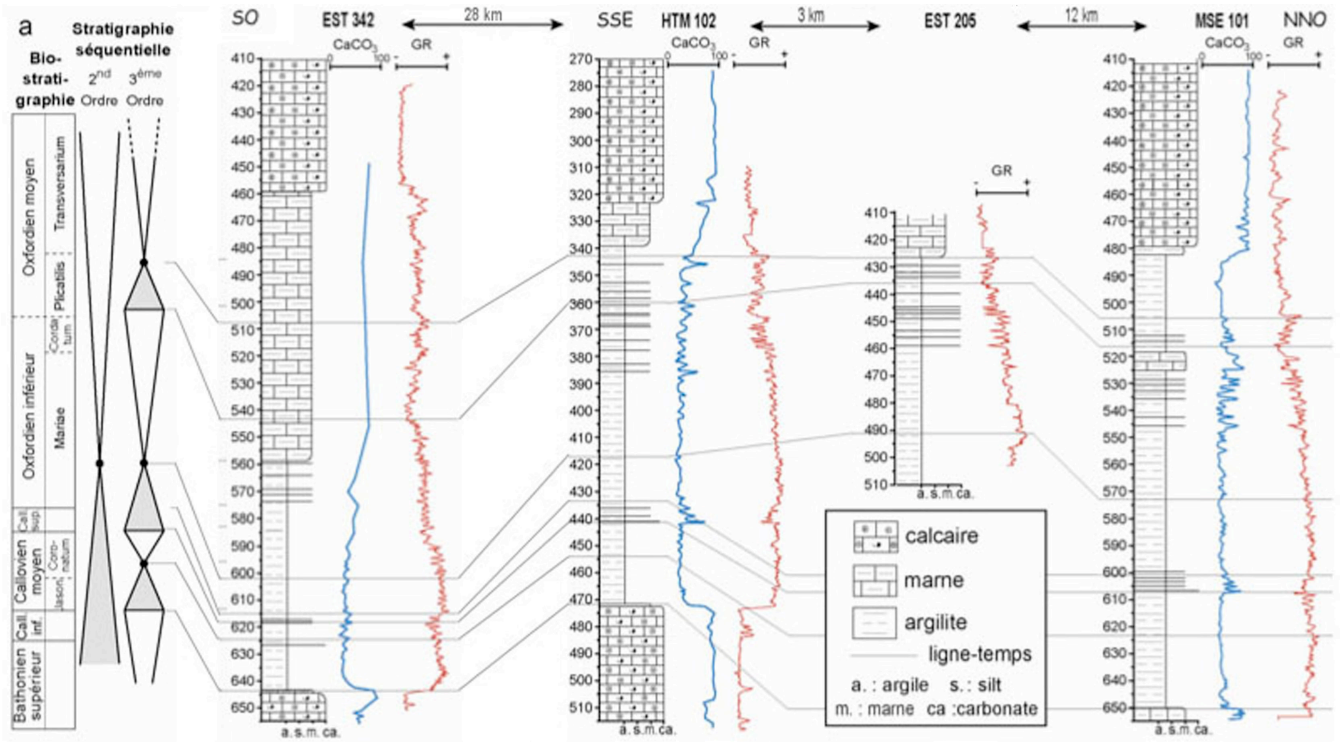
Au point de vue séquentiel, la base de la première séquence de dépôt est placée au sommet de la plate-forme du Dogger, à 650 m, et son sommet au niveau du premier banc carbonaté du Callovien supérieur à 607 m. Sa surface d'inondation maximale est positionnée à 624 m. La seconde séquence se termine à 516 m; sa surface d'inondation est localisée à 573 m et correspond encore au changement de minéralogie des argiles R₀/R₁ en R₁/R₀ (Rousset 2002; Pellenard, 2003). La surface d'inondation maximale de la troisième séquence est placée à 505 m et coïncide avec un second changement minéralogique. En effet, vers 505 m, les interstratifiés I/S R=1 remplacent à nouveau les interstratifiés I/S R=0. Les échantillons prélevés dans ce forage sont donc marqués par une lithologie argilo-carbonatée pour T1-471. Le tronçon T1-562 correspond au contact entre le calcaire du Dogger et l'argilite du Callovien qui est de composition marneuse.

Si on synthétise ces données lithologiques et séquentielles, on peut proposer un découpage lithologique simplifié pour tous les forages, dans lequel le forage EST342 est légèrement plus argilo-silteux que les autres. J'ai numéroté ce découpage lithologique de 1 à 10 (voir Fig. IV.4).

4.3. Corrélations entre forages

Les quatre forages étudiés dans ce secteur forment deux transects quasiment centrés sur le laboratoire souterrain de Bure (Figs. IV.1 & IV.5). (1) Le premier regroupe les forages MSE 101, EST211 et HTM 102. Sa longueur est d'une quinzaine de kilomètres et son orientation est NO-SE (Fig. IV.1); (2) Le second regroupe les forages HTM 102 et EST 342. Sa longueur est d'une trentaine de kilomètres et son orientation est ENE-OSO. Ce transect recoupe le fossé de Joinville.

4 – Apports du magnétisme dans les argilites



..... surface d'inondation maximale de la séquence de 2nd ordre correspondant à un changement de la minéralogie des argiles

Figure IV.5: Comparaison des découpages lithologiques et séquentiels des forages: a) forages EST342, HTM102, EST205 (ou EST211) et MSE101 avec évolution de la quantité de carbonate (CaCO₃) et de l'intensité du "gamma-ray" (GR) sensible aux concentrations relatives entre argiles et carbonates. Les forages sont corrélés entre-eux par des lignes-temps tracées sur la base des découpages séquentiels et biostratigraphiques qui sont également indiqués; b) évolution de la composition minéralogique des argiles des forages EST342, HTM102 et MSE101 de l'Est du bassin de Paris; d'après Pellenard, 2003 et Andra, 2005.

Les découpages biostratigraphiques et séquentiels (Pellenard, 2003; Andra, 2005) permettent une bonne corrélation entre ces forages (Tableau IV.1) même si, dans le détail, on peut discuter de la validité de certaines lignes-temps.

Tableau IV.1: corrélations des limites de séquence avec les profondeurs et les épaisseurs associées; d'après les mesures Diastrata (2001 et 2003) sur échantillons de l'Andra (2005).

Argilites (1)	HTM102	MSE101	EST205	EST342	EST211
3ème séquence de dépôt					
demi-cycle régressif (2)	343	505	427	508	417
demi-cycle transgressif	360-343	516-505	436-427	544-508	433,5--
2ème séquence de dépôt	441-360	607-516	--436	618-544	--433,5
demi-cycle régressif	417-360	574-516	491-436	602-544	492--
demi-cycle transgressif	441-417	607-574	--491	618-602	517-492
1ère séquence de dépôt	471-441	651-607	-	643-618	555-517
demi-cycle régressif	454-441	624-607	-	625-618	--529
demi-cycle transgressif	471-454	651-624	-	643-625	-
Plate-forme du Dogger	471	651	-	643	555

(1) les argilites comprennent la 1ère et la 2ème séquence de dépôt ainsi que le demi-cycle transgressif de la 3ème séquence.

(2) le demi-cycle régressif de la troisième séquence correspond à l'installation de la plate-forme oxfordienne.

4.4. Etude magnétique des échantillons de forage

Pour évaluer la sensibilité du signal magnétique et sa variabilité, les premières mesures sur les argilites ont été effectuées sur les tronçons T1-337 et T1-455, avant d'être appliquées aux tronçons T1-342, T1-450, T1-471 et T1-562 des forages HTM102 et MSE101 (Figs. IV.1 et IV.2).

4.4.1. Minéralogie magnétique

4.4.1.1. Susceptibilité et rémanence magnétiques

La mesure de la susceptibilité (K) et de l'aimantation rémanente naturelle (ARN) ont permis d'évaluer la variabilité pouvant apparaître au sein de chaque tronçon (Fig. IV.6). On constate que les tronçons de la partie sommitale, riche en bancs calcaires (T1-337; T1-342), sont très hétérogènes. Pour T1-337, le plus hétérogène de la partie sommitale, on a de faibles susceptibilités allant de 20 à 90 μSI , et une ARN comprise entre 100 et 300 $\mu\text{A/m}$. En base de couche, les tronçons sont beaucoup plus homogènes et ont un signal plus fort, en relation avec un taux d'argile plus important qu'au sommet du Callovo-Oxfordien. Ceci se traduit par des susceptibilités beaucoup moins variables, allant de 110 à 120 μSI et une rémanence naturelle allant de 1050 à 1500 $\mu\text{A/m}$. On devine déjà une plus grande proximité des sources d'alimentation dans le forage MSE101 par rapport au forage HTM102, avec des valeurs plus fortes pour K et ARN (Tableau IV.2) marquant une plus grande abondance en minéraux contenant du fer, et une plus grande fréquence d'apparition des lits plus carbonatés en s'approchant du sommet de la formation du Callovo-Oxfordien, le signal magnétique étant plus hétérogène et dilué par les carbonates. Par ailleurs, les faibles susceptibilités appellent à une dominance du comportement paramagnétique (Chap. III.3.3.2.) porté principalement par les minéraux argileux. Pour une fraction argileuse donnée, les variations de susceptibilité dépendent du rapport entre les argiles "ferrifères" et les autres silicates contenant du fer pour le comportement paramagnétique, et de la présence d'oxydes et/ou de sulfures de fer pour la fraction ferrimagnétique. Ces variations de K et ARN en fonction de la nature lithologique se retrouvent dans tous les forages. Elles ont, bien sûr, déjà été observées par Pellenard (2003) et Huret et al. (2005) sur les log de forage, où la corrélation positive est très nette entre susceptibilité, densité et teneur en argiles, en fonction de l'importance de la fraction carbonatée.

On peut tenter de préciser la nature des minéraux contenant du fer en comparant K en fonction de ARN (Fig. IV.7). Ces valeurs sont proches de l'origine pour les niveaux les plus carbonatés du sommet de la formation. Elles ont des valeurs plus élevées lorsque la roche s'enrichit en argile et en grains ferrimagnétiques en base de formation. L'apparition de la composante ferrimagnétique, qui déplace les points parallèlement à l'axe de rémanence, se corrèle bien avec l'augmentation de la quantité de silt. Ce diagramme bi-dimensionnel $K=f(\text{ARN})$ constitue donc un "proxy" de premier ordre des concentrations relatives en argile, silt et carbonates, même si la concentration des "ferrimagnétiques" est beaucoup mieux décrite par l'aimantation de saturation (M_s) que par l'aimantation naturelle qui est plus variable et peut dépendre aussi de l'efficacité du mécanisme d'acquisition.

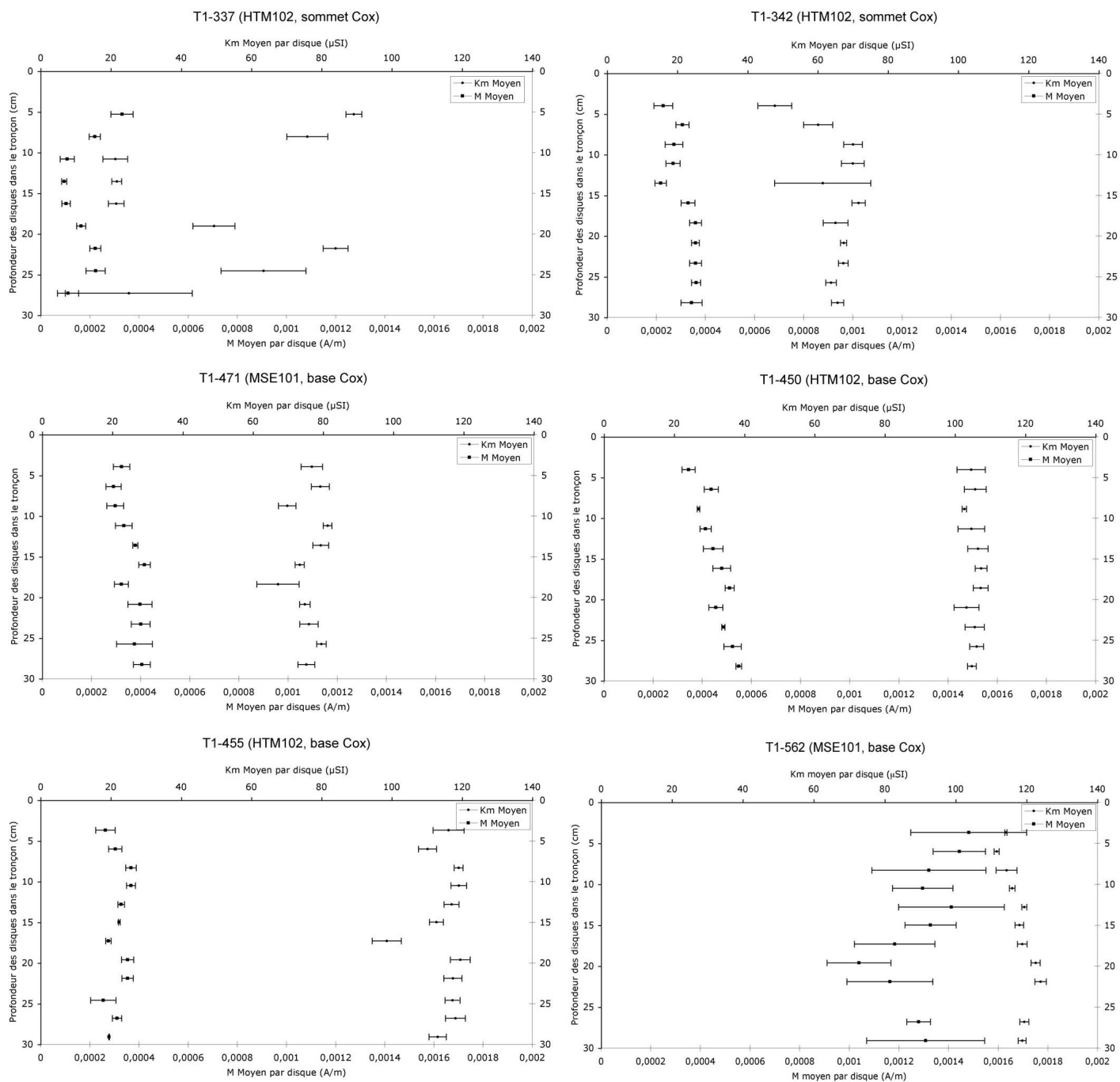


Figure IV.6: Variabilités de la susceptibilité magnétique (Km) et de l'intensité de l'aimantation rémanente naturelle (ARN), déterminées à l'aide de 300 échantillons au sein des 6 tronçons étudiés du Callovo-Oxfordien (Cox).

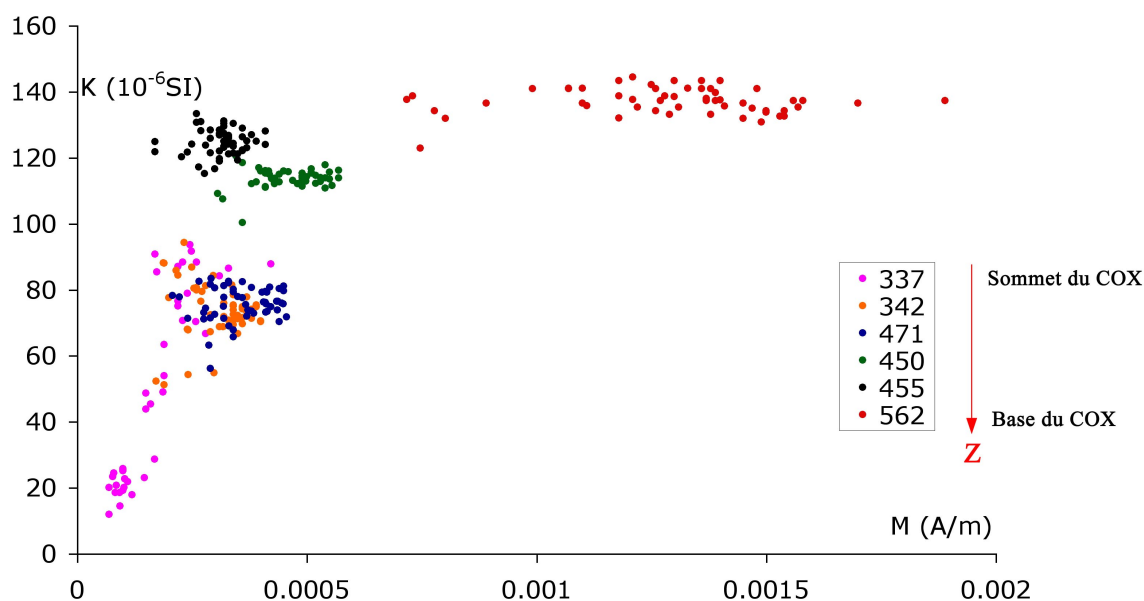


Figure IV.7: Susceptibilité magnétique en fonction de l'aimantation rémanente naturelle (ARN) pour les 6 tronçons du Callovo-Oxfordien (COX).

Une autre représentation est fournie par K en fonction de la rémanence anhystérétique (ARA) acquise par implantation d'un champ AF de 100 mT selon l'axe +z de l'échantillon, associé à un champ DC de 0,5 mT selon le même axe (Fig. IV.8). Comme l'ARN, l'ARA permet d'évaluer l'abondance en minéraux ferrimagnétiques tels que la (titano-)magnétite de grande taille, la greigite et la pyrrhotite. A l'intensité de l'aimantation près (l'ARA est au moins dix fois plus intense que l'ARN), on retrouve exactement les mêmes tendances proches de l'origine (avec K et ARA faibles) pour les échantillons du sommet de la formation du Callovo-Oxfordien, répartis sur une droite parallèle à l'axe K pour un mélange argiles-carbonates, et distribués à peu près parallèlement à l'axe ARA pour les échantillons de la base de la formation (T1-450 et T1-455), enrichis en silts.

Ces évolutions montrent bien que l'appauvrissement en argile se fait de concert avec un faible enrichissement en silt, ce qui caractérise le sommet de la formation (pente forte) alors que les échantillons en base de la formation connaissent un apport plus fort de grains ferrimagnétiques, marqué par de fortes variations de la rémanence au sein d'un même tronçon (pour une concentration en argile constante).

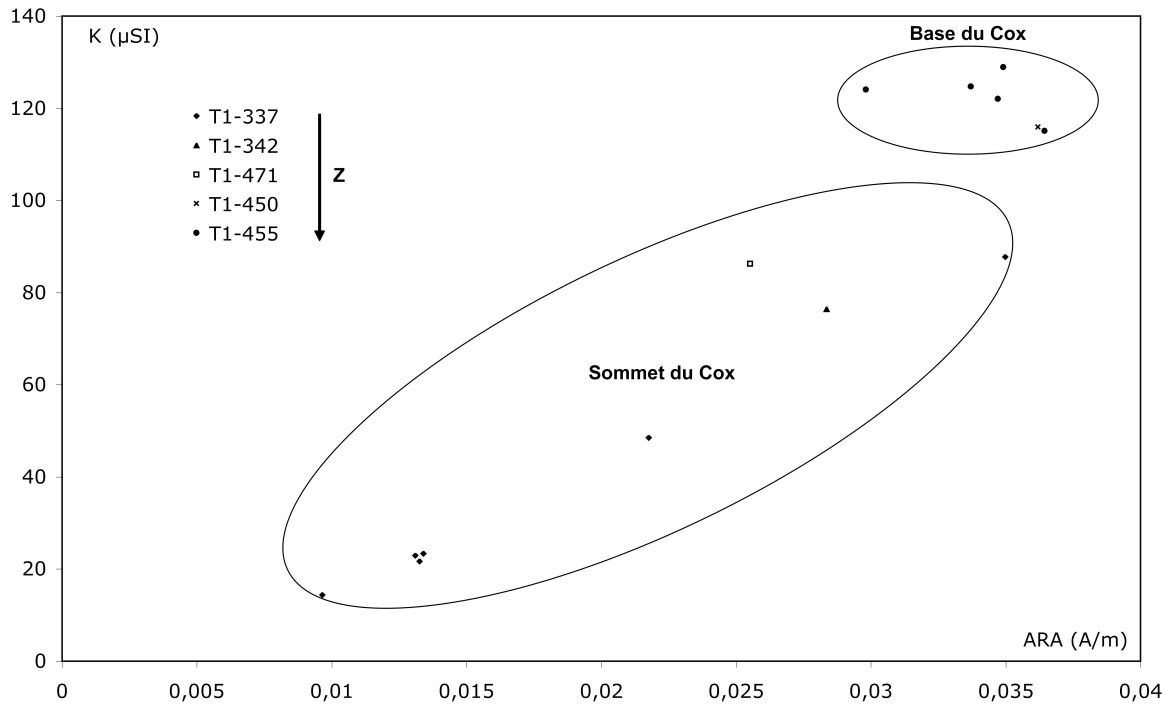


Figure IV.8: Susceptibilité magnétique (K) en fonction de l'aimantation rémanente anhystérique (ARA) pour quelques échantillons représentatifs des 5 tronçons (T1-337, T1-342, T1-471, T1-450 et T1-455) du Callovo-Oxfordien (Cox).

Pour tenter de préciser la nature de la fraction ferrimagnétique, on a comparé la susceptibilité à la rémanence à saturation (sous 2T; $ARI_s[0-2T]$; Fig. IV.9a). Ceci permet d'évaluer la concentration en grains ferrimagnétiques (toutes coercivités confondues). On a également construit K en fonction de HIRM (i.e. $ARI_h[0,3-2T]$; Fig. IV.9b), qui mesure l'aimantation rémanente qui reste après saturation magnétique (ARIs) suivie d'une désaimantation au-dessous de 300 mT, ce qui permet de retirer les composantes de faibles et moyennes coercivités, et donc d'isoler la fraction de plus haute coercivité. On constate que les échantillons situés à la base du Callovo-Oxfordien (T1-450 et T1-455) présentent de faibles concentrations en grains ferrimagnétiques (les valeurs des ARIs fluctuent autour de 0,1 A/m) et que les échantillons situés au sommet du Callovo-Oxfordien possèdent en moyenne 50% de grains ferrimagnétiques en plus, avec des ARIs autour de 0,15 A/m. Lorsqu'on regarde la concentration en grains ferrimagnétiques de haute coercivité (Fig. IV.9b) celle-ci reste faible (de l'ordre de 4%) à la base de la formation (autour de 0,004 A/m) alors qu'au sommet, les contributions en grains de haute coercivité sont au moins deux fois plus importantes (0,008 à 0,013 A/m; Tableau de la Fig. IV.9b).

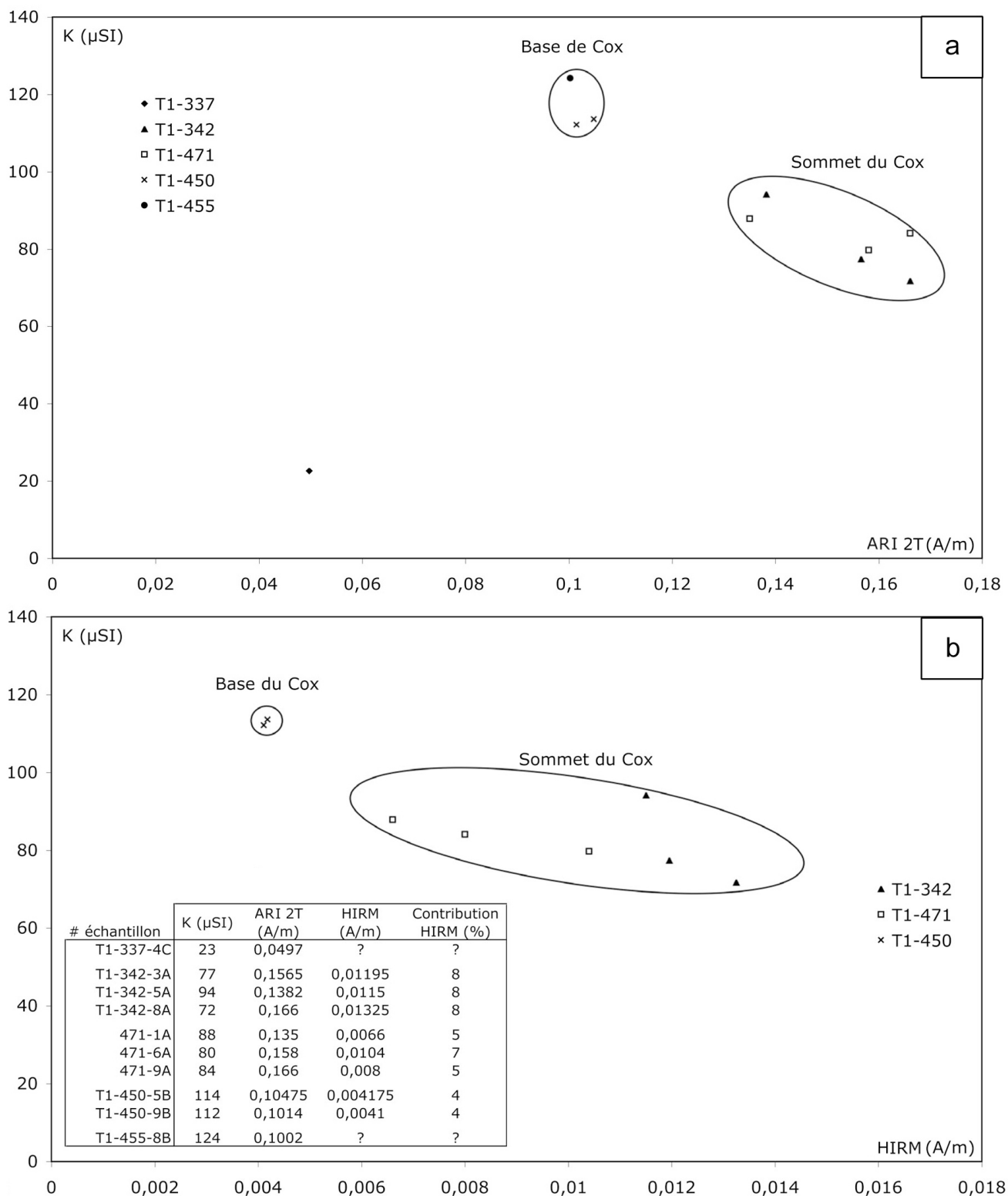


Figure IV.9: Susceptibilité magnétique en fonction des minéraux de haute coercivité. a) K en fonction de ARI à 2T pour quelques échantillons de 5 tronçons (T1-337, T1-342, T1-471, T1-450 et T1-455); b) K en fonction de HIRM pour quelques échantillons de 3 tronçons (T1-342, T1-471 et T1-450). Le tableau donne les valeurs absolues de K, ARI, HIRM et la contribution de HIRM par rapport à l'ARI totale pour les échantillons des 2 diagrammes.

4.4.1.2. Minéralogie magnétique: hystérésis et taille des grains

Les contributions des grains ferrimagnétiques sont également évaluées à l'aide des mesures d'hystérésis (effectuées au CEREGE). Celles-ci ont concerné douze échantillons de ~1 cm³ (4 échantillons de T1-337, 1 échantillon de T1-342, T1-450 et T1-471, et 5 échantillons de T1-455). La contribution ferrimagnétique à la susceptibilité a été calculée en soustrayant la loi du comportement paramagnétique (linéaire) à la boucle d'hystérésis qui représente la somme des concentrations paramagnétique et ferrimagnétique. Cette contribution ferrimagnétique va de 9% (T1-455, moyenne à 12%) à 29% (T1-337, moyenne de 24%) dans les échantillons mesurés (Tableau IV. 3). On retrouve ce qui a été observé en ARIs et HIRM au paragraphe précédent, à savoir que le sommet du Callovo-Oxfordien possède environ deux fois plus de grains ferrimagnétiques que la base.

ECH	Mr (μAm ² /kg)	Ms (μAm ² /kg)	Hc (mT)	Hcr (mT)	Mr/Ms	Hcr/Hc	% ferri.	K (μSI)	SARA (A/m)	ARA (-40 mT) (A/m)	ARA(40)/SARA	ARIs (A/m)	ARIs/k (kA/m)	ARI(-100mT) (A/m)	ARI(-100)/ARIs	SARA/ARIs
T1-337-1	39	299	7	41	0,13	5,78	14	86	0,0350	0,0072	0,206	0,149	1,73			0,24
T1-337-4D	7	24	46	58	0,29	3,63	24	19	0,0133	0,0020	0,151	0,056	2,95			0,24
T1-337-5	33	172	13	44	0,19	3,31	28	23	0,0131	0,0027	0,209	0,108	4,73			0,12
T1-337-9	14	83	12	49	0,16	4,25	29	34	0,0096	0,0017	0,176	0,039	1,15			0,25
T1-342-3D	30	155	45	56	0,19	3,43	17	81	0,0284	0,0040	0,141	0,150	1,85	-0,0707	-0,4710	0,19
T1-471-2C	26	140	40	50	0,19	3,14	16	88	0,0255	0,0064	0,251	0,132	1,50	-0,0718	-0,5427	0,19
T1-450-1D	20	143	34	42	0,14	4,42	16	107	0,0362	0,0056	0,156	0,101	0,94	-0,0737	-0,7275	0,36
T1-455-1	42	287	7	33	0,15	4,78	10	125	0,0337	0,0050	0,148	0,124	0,99			0,27
T1-455-4	37	249	6	33	0,15	5,13	9	124	0,0347	0,0052	0,150	0,120	0,97			0,29
T1-455-4B	15	151	33	41	0,10	5,37	13	125	0,0347	0,0052	0,150	0,111	0,89			0,31
T1-455-8	24	335	4	33	0,07	7,87	13	127	0,0349	0,0053	0,150	0,134	1,05			0,26
T1-455-12	36	374	6	35	0,10	6,15	13	119	0,0364	0,0055	0,151	0,150	1,26			0,24

Tableau IV.3: Mesures d'hystérésis (Mr, Ms, Hc, Hcr) et calculs de divers paramètres magnétiques permettant de caractériser la minéralogie magnétique.

Ainsi, les niveaux homogènes les plus susceptibles de la base du Callovo-Oxfordien sont-ils moins ferrimagnétiques que ceux situés en haut de la couche. L'explication est à rechercher dans la nature et la taille des grains magnétiques. Les paramètres d'hystérésis (Tableau IV.3), représentés sur un diagramme de Day (Mr/MS = f(Hcr/Hc); Fig. IV.10) permettent de caractériser la taille des domaines et/ou des grains d'un agrégat de magnétite. Dans ce diagramme, nos échantillons se placent dans le secteur PSD et au-dessus du domaine MD. On observe une tendance à la croissance des grains magnétiques, matérialisé par le déplacement des points de PSD vers MD, entre le sommet et la base de la formation. Ceci pourrait traduire l'influence du rapport argile/calcite entre ces deux niveaux, la base de la formation étant à la fois plus argileuse et plus silteuse.

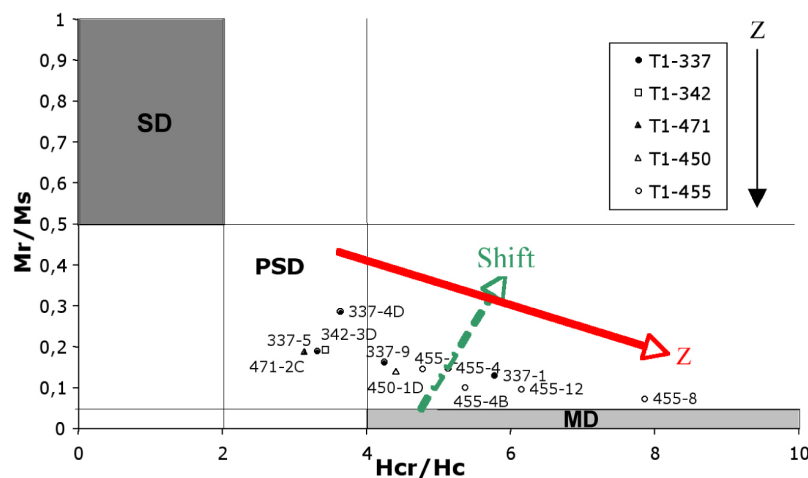


Figure IV.10: Diagramme de Day pour certains échantillons pris parmi les 5 tronçons du Callovo-Oxfordien. SD: grains simple domaine, PSD: pseudo-simple domaine; MD: multiples domaines. Flèche pleine: évolution de la base vers le sommet de la formation.

Ce diagramme n'est qu'indicatif puisqu'il suppose que l'agrégat magnétique ne possède que de la magnétite, ce que nous ignorons à ce stade de l'étude. Il se révélera plus tard être composé aussi de sulfures de fer. On remarque par ailleurs que les points de mesure sont déplacés vers le haut, i.e. en dehors des lignes de tendance classiques (flèche verte "shift"; Fig. IV.10). Ce décalage peut s'expliquer par: (1) la présence de grains de très petite taille (nanométriques), super-paramagnétiques; (2) présence d'autres phases ferrimagnétiques (titanomagnétites, sulfures de fer...); ou enfin (3) un effet de ré-aimantation de la roche par un champ plus récent (actuel?).

Nos mesures de la susceptibilité magnétique en bi-fréquence, effectuées au Bartington MS-2 au CEREGE semblent cependant exclure la présence de grains super-paramagnétiques (Fig. IV.11a et b).

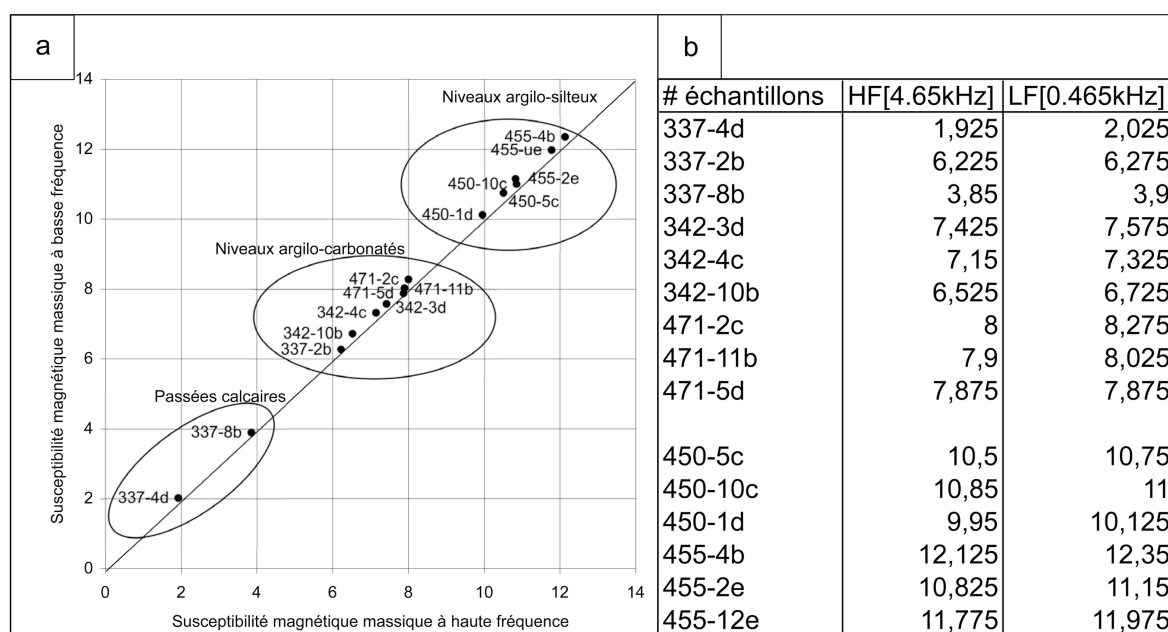


Figure IV.11: a) Susceptibilités magnétiques massiques mesurées à basse et à haute fréquence, pour quelques échantillons issus des tronçons T1-337, T1-342, T1-471, T1-450 et T1-455): (a) Diagramme bidimensionnel; (b) Tableau des mesures brutes.

Un effet de ré-aimantation (perte de l'aimantation primaire au profit d'une aimantation plus récente), qui suppose une évolution de la minéralogie magnétique avec le temps liée à un phénomène géologique notoire (circulation hydrothermale minéralisante, par exemple), ne semble pas avoir joué dans nos roches. Par ailleurs, tous nos points se placent sur une droite de pente parallèle aux échantillons de Parry (1982), mélanges de grains MD et de SD (Fig. IV.12), ce qui semble écarter l'hypothèse d'une ré-aimantation (Jackson et al., 1993; Channell and McCabe, 1994; Banerjee et al., 1997 et Katz et al., 1999).

4 – Apports du magnétisme dans les argilites

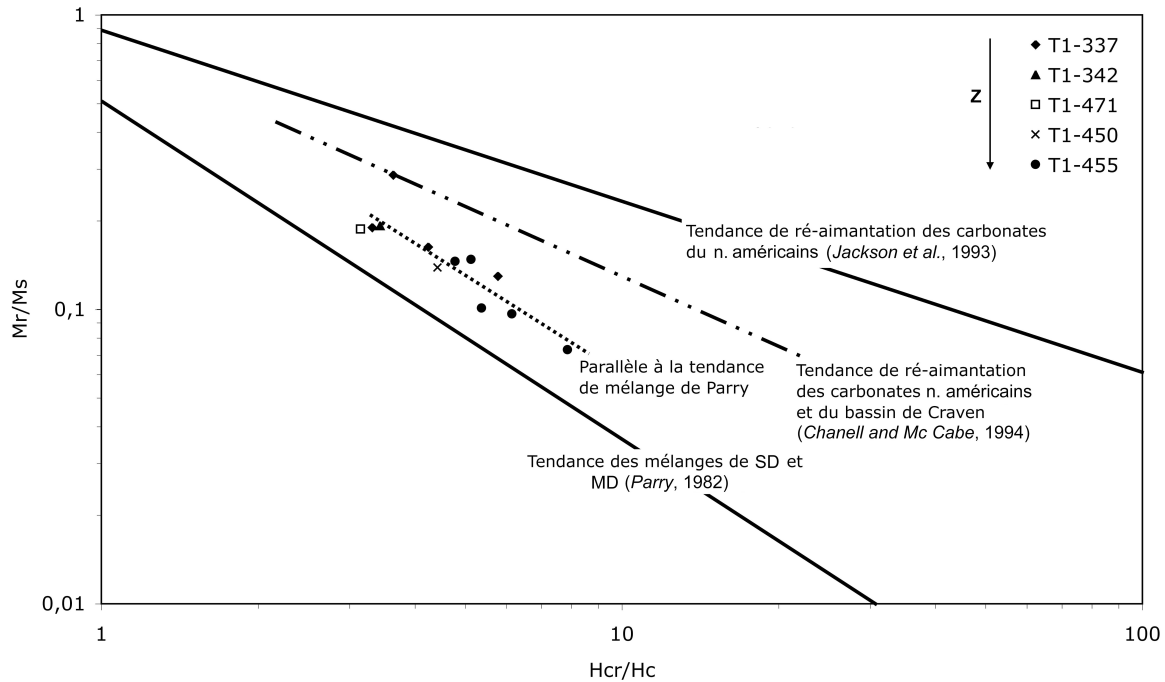


Figure IV.12: Diagramme Log-Log des paramètres d'hystérésis de quelques échantillons du Callovo-Oxfordien (provenant des tronçons T1-337, T1-342, T1-471, T1-450 et T1-455) comparés aux données de carbonates ré-aimantés (Jackson et al., 1993; Chanell and McCabe, 1994) et de mélange de SD et MD (Parry, 1982).

Ce déplacement de la ligne de tendance dans la figure IV.10 est alors (peut-être) lié à un mélange de titano-magnétites de différentes tailles, ou à un effet d'interaction entre sulfures et oxydes de fer. Nous avons tenté d'évaluer ces interactions en utilisant l'approche de Cisowski (1981) où les courbes normalisées de l'acquisition de l'ARI, et de la désaimantation de l'ARI et de l'ARA sont comparées, pour un échantillon de chacun des 3 tronçons T1-342, T1-471 et T1-450 (Fig. IV.13).

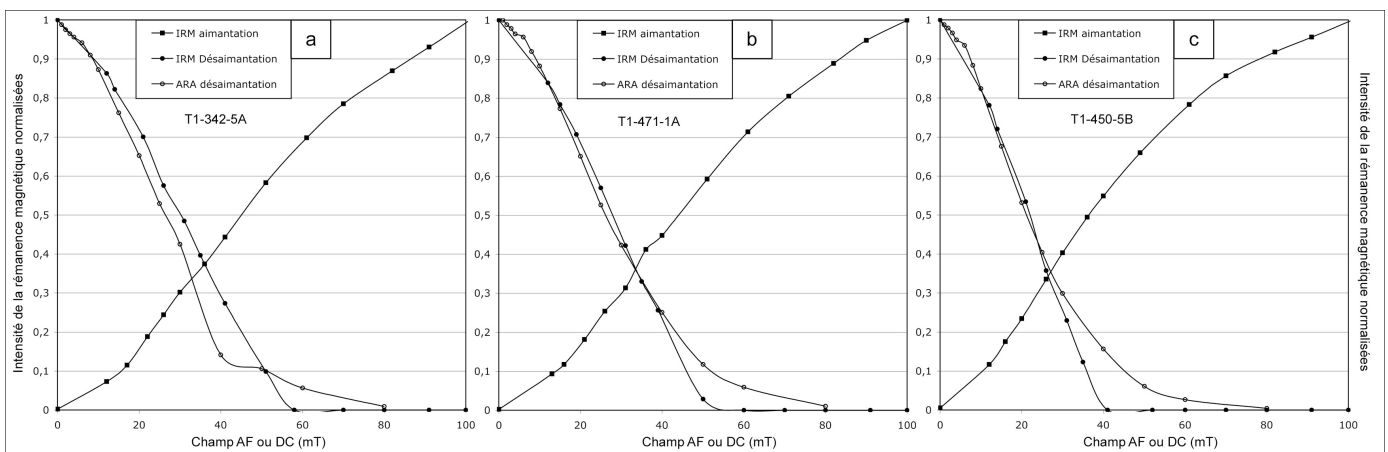


Figure IV.13: Courbes normalisées de l'acquisition de l'ARI et de la désaimantation de l'ARI et de l'ARA pour T1-342-5A (a), T1-471-1A (b) et T1-450-5B (c).

D'après Cisowski (1981), la non-symétrie des courbes d'acquisition et de désaimantation de l'ARI indiquent que les grains ferrimagnétiques (magnétite surtout) interagissent entre eux. Les intersections de ces courbes, pour des valeurs un peu inférieures à 0,5, suggèrent que les grains de types SD n'interagissent pas entre-eux (Wohlfarth, 1958; Cisowski, 1981). Les courbes de désaimantation de l'ARI et ARA quasiment identiques, indiquent effectivement que les interactions des grains ferrimagnétiques sont faibles, sauf pour T1-342 où on peut avoir des interactions entre magnétites SD allongées ou formant des chaînes d'origine bactérienne.

4.4.1.3. Autres paramètres destinés à préciser la minéralogie magnétique

Nous avons tenté de caractériser plus finement la nature des minéraux ferrimagnétiques et leurs concentrations relatives, à partir de l'acquisition de l'ARI (aimanteur pulse MMPM10 et magnétomètre JR5-A). Sur certains échantillons de différents tronçons, la saturation à 1T a été mesurée, pour vérifier si des minéraux de très haute coercivité, tels que la goéthite et/ou l'hématite sont présents. Les mesures montrent une nette différence entre la base et le sommet du Callovo-Oxfordien (Fig. IV. 14).

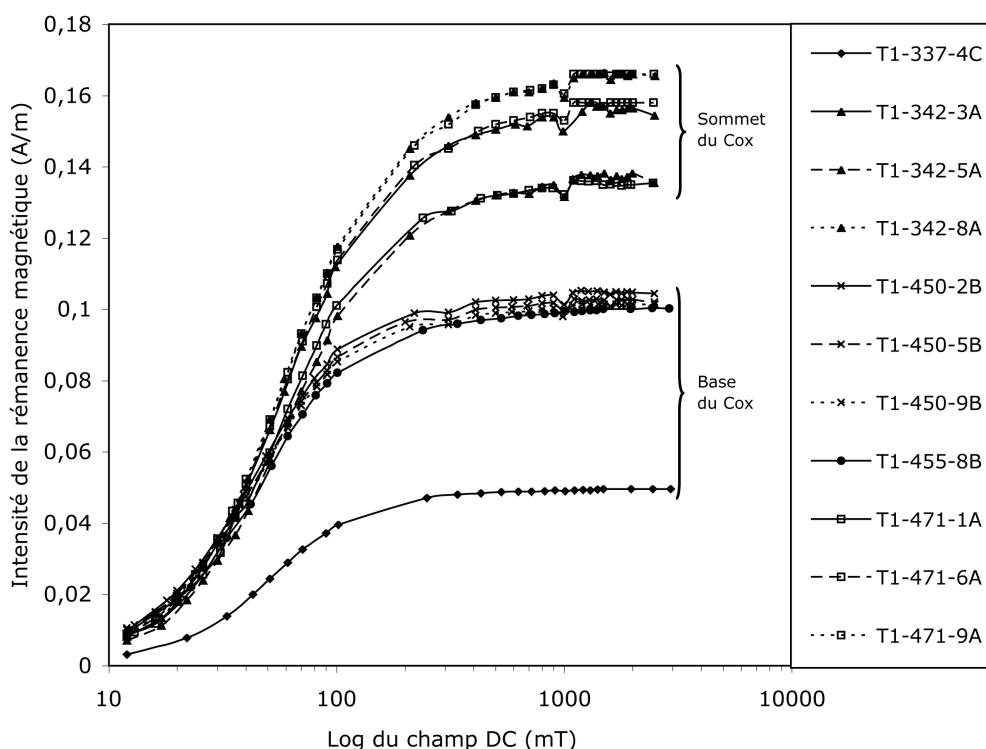


Figure IV.14: Courbes d'acquisition de l'ARI pour certains échantillons de tous les tronçons à l'exception de T1-562.

On constate qu'à la base du Callovo-Oxfordien, les échantillons (T1-450-2B, 5B, 9B et T1-455-8B) saturent dès 300 mT, ce qui indique non seulement l'absence d'hématite et de goéthite mais aussi de magnétite de petite taille. Le sommet de la formation (T1-337-4C, T1-342-3A, 5A, 8A et T1-471-1A, 6A, 9A) est un peu plus variable, avec des valeurs d'aimantation à saturation allant de 0,13 à 0,16 A/m au sein d'un même tronçon. L'intensité de l'aimantation à saturation est deux fois plus forte au sommet qu'à la base de la formation car, comme déjà observé plus haut (§. 4.4.1.1 et 4.4.1.2), la concentration en minéraux ferrimagnétiques est probablement double.

4 – Apports du magnétisme dans les argilites

C'est également au sommet du Callovo-Oxfordien que de la magnétite fortement coercitive (petite taille de grain) est observée, avec une saturation atteinte autour de 500-600 mT, comme le montrent les données d'hystérésis dans ces niveaux (§ 4.4.1.2.), mais l'hématite et la goéthite ne sont toujours pas présentes.

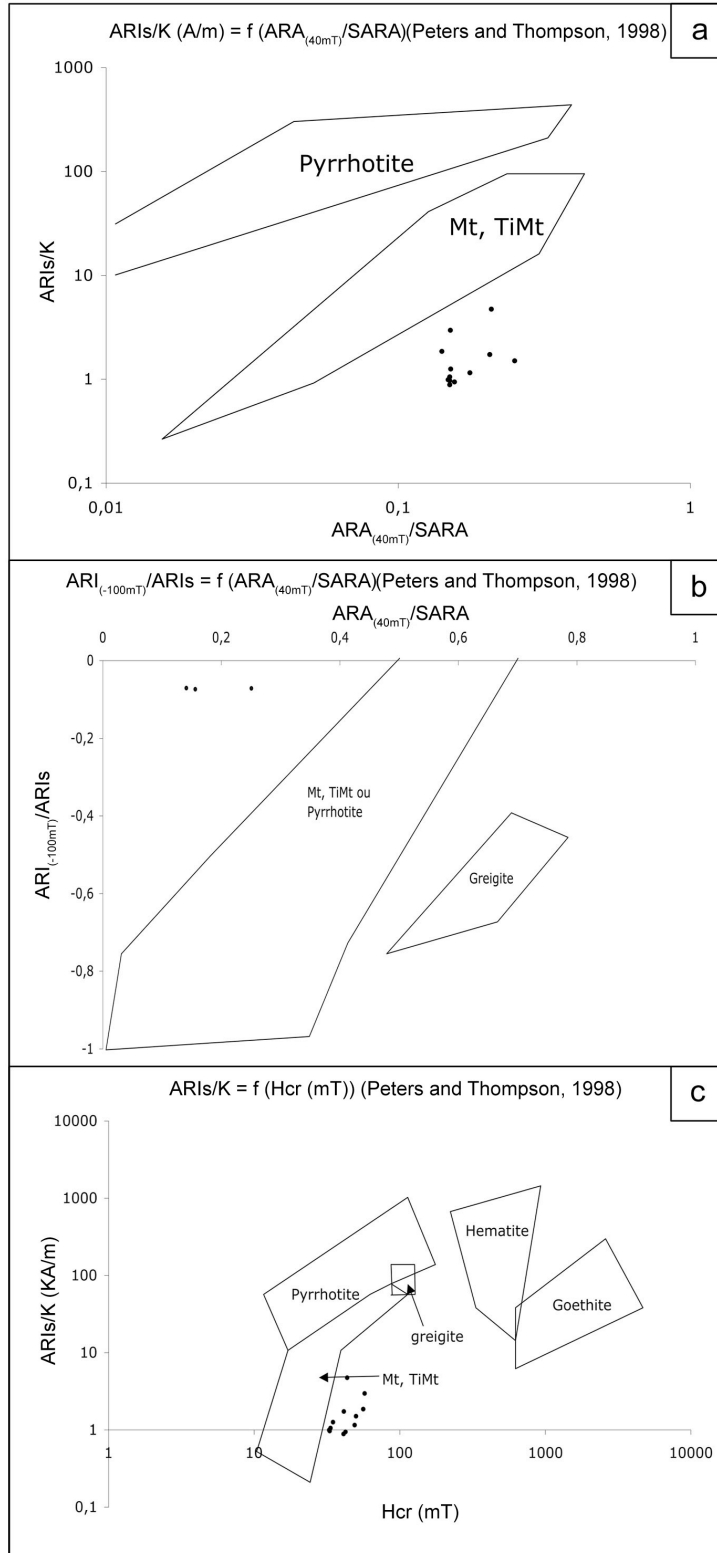


Figure IV.15: Diagrammes de Peters and Thompson (1998) pour certains échantillons de tous les tronçons sauf T1-562. a) log-log $ARIs/K$ en fonction de $ARA(-40mT)/ARAs$, destiné à "repérer" la pyrrhotite; b) $ARI(-100mT)/ARIs$ en fonction de $ARA(-40mT)/ARAs$, destiné à "repérer" la greigite, et c) log-log $ARIs/K$ en fonction de Hcr destiné à faire ressortir les minéraux à forte coercivité.

A partir de ces nombreuses données (hystérésis, ARI, ARA, K et ARN), différents paramètres ont été calculés pour caractériser la nature des minéraux (Tableau IV.3). A la suite de Peters et Thompson (1998), nous avons calculé ARIs/K en fonction de ARA (-40mT)/ARAs. Les résultats montrent que les points, bien qu'en dehors des zones prédéfinies par les auteurs (Fig. IV. 15a), tendent vers la magnétite et/ou titanomagnétite de petite taille de grain, responsable de la forte coercivité. On retrouve les mêmes tendances dans ARI(-100mT)/ARIs en fonction de ARA(-40mT)/ARAs (Fig. IV.15b), les points se plaçant également en dehors des zones attendues et dans une zone de grains de petite taille (SD). De même, ARIs/K en fonction de Hcr se place à proximité des zones de la magnétite ou de la titanomagnétite (Fig. IV.15c). Les interactions présentées dans le paragraphe précédent semblent ici négligeables. L'analyse minéralogique doit donc encore être affinée par des approches couplées avec des tests à haute et basse températures.

4.4.1.4. Tests thermiques d'identification de la minéralogie magnétique

Le test de Lowrie-Fuller (Lowrie, 1990; Xu and Dunlop, 1995) a été appliqué à quelques échantillons des tronçons T1-337 et T1-455 pour tester la présence de sulfures de fer ferrimagnétiques, en plus des oxydes de fer (Fig. IV.16).

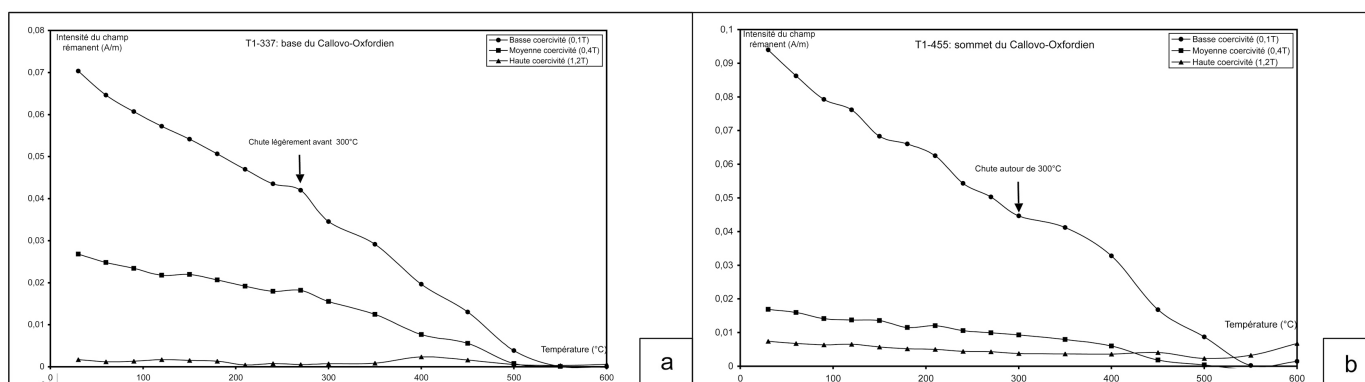


Figure IV.16: Désaimantation thermique à trois composantes: différentes coercivités sont implantées perpendiculairement entre elles (test de Lowrie). a) Moyenne sur 3 échantillons de T1-337; b) Moyenne sur 6 échantillons de T1-455.

Pour tenter d'augmenter le signal, les mesures effectuées sur un même tronçon ont été additionnées puis moyennées (Fig. IV.16). On constate que la fraction de haute coercivité (1,2T) ne fournit aucun signal, si ce n'est un léger saut de l'aimantation de la rémanence autour de 400°-450°C qui pourrait marquer l'apparition d'une nouvelle phase (magnétite?) ou l'amélioration de la cristallinité d'une phase déjà existante. Les fractions de moyenne (0,4T) et de basse coercivité (0,1T) ont à peu près les mêmes évolutions, avec une température de déblocage vers 300°-400°C, ce qui suggère fortement la présence d'un sulfure de fer, pyrrhotite ou greigite, leurs températures de déblocage étant trop voisines pour être distinguées (Dekkers, 1990; Roberts, 1995; Dekkers and Schoonen, 1996; Dunlop and Ozdemir, 1997). Enfin, tous les échantillons sont totalement désaimantés autour de 600°C, ce qui indique la présence de (titano)-magnétite et l'absence d'hématite. Le tronçon de la base de la formation (T1-455) pourrait présenter un sulfure de fer mieux cristallisé (ou plus abondant) que le tronçon du sommet de la formation (T1-337) car les changements de pente sont plus marqués.

La mesure de la susceptibilité magnétique après certains paliers de chauffage permet de mieux comprendre les transformations minéralogiques. On constate en effet que K augmente brutalement à partir de 350°C (Fig. IV.17) probablement par déstabilisation des sulfures de fer (émettant une odeur d'oxyde de soufre caractéristique). Pour les échantillons T1-455, on observe un palier de susceptibilité entre 400° et 500°C avant une nouvelle croissance forte de K avec la température. Au contraire, pour T1-337, ce domaine de températures est celui où la susceptibilité est maximum. Les phases formées sont, peut-être momentanément (jusque vers 400°C) des sulfures ferrimagnétiques (?), et plus sûrement de la magnétite, puis de l'hématite, au moins pour T1-455 qui est rougi après expérience, contrairement à T1-337 qui reste gris après chauffage à 700°C .

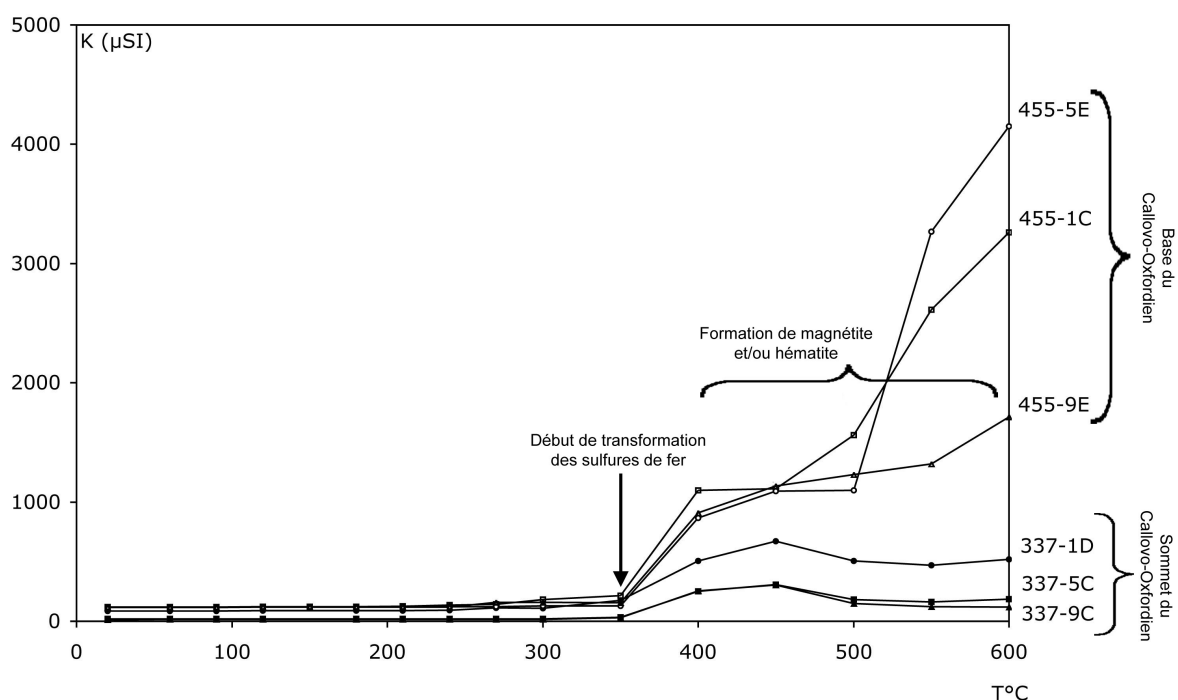


Figure IV.17: Susceptibilité magnétique au cours de chauffages "successifs" pour 3 échantillons de T1-337 et de T1-455.

Parallèlement au test de Lowrie, la susceptibilité magnétique mesurée au cours de cycles de chauffage-refroidissement sous atmosphère ambiante et sous argon (courbe $K(T)$, voir Chap. III.3.3.1) permet d'appuyer nos interprétations (Fig. IV.18).

La mesure sous air montre l'importance de l'oxydation avec création de minéraux très susceptibles (Fig. IV.18a et d). Au cours du premier cycle de chauffage, la faible augmentation de la susceptibilité entre 400° et 500°C suggère qu'il y a formation de magnétite à partir du fer contenu dans les argiles (Roberts and Turner, 1993).

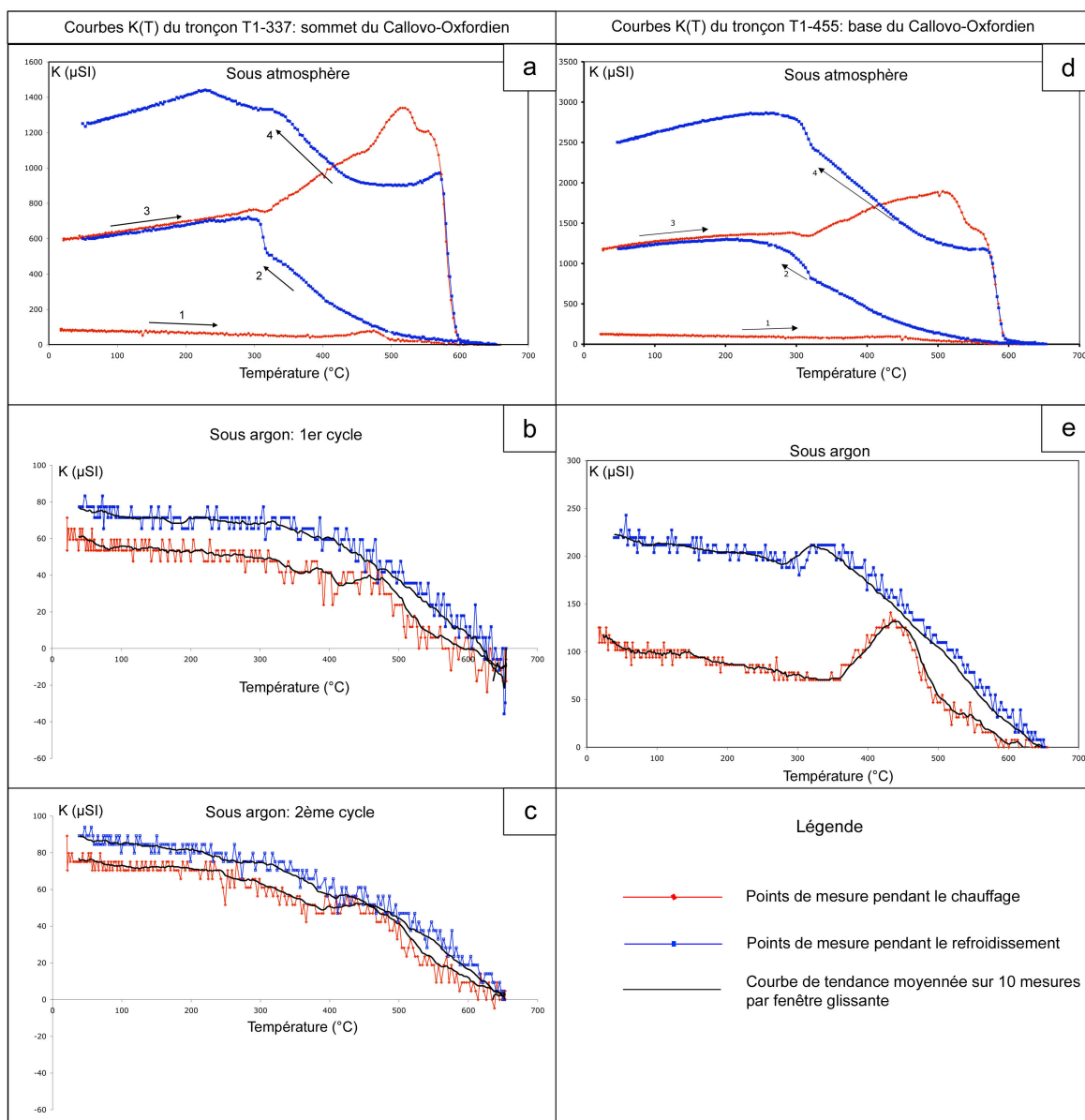


Figure IV.18: Susceptibilité en fonction de la température $K(T)$ au cours de cycles de chauffage-refroidissement pour un échantillon de T1-337 et un de T1-455. a) et d) sont mesurées sous air; b), c) et e) sont mesurées sous gaz neutre (argon).

Dans l'ensemble, le signal est deux fois plus important pour T1-455, plus riche en argile que pour T1-337. Au cours du premier refroidissement, il se forme très peu de magnétite car nous n'observons pas d'augmentation de susceptibilité vers 580°C (T_c de la magnétite). Par contre, l'augmentation de susceptibilité vers 320°C peut souligner la température de blocage des sulfures de fer ferrimagnétiques ou peut-être liée à la néoformation de maghémite. Comme pour les tests de Lowrie, la séparation entre pyrrhotite ($T_c \sim 330^\circ\text{C}$) et greigite ($T_c \sim 325^\circ\text{C}$) semble impossible à trancher. Au cours du deuxième chauffage, on observe une augmentation importante de la susceptibilité vers 500°C, avec un pic. Cette variation caractérise la formation de magnétite de petite taille (pic d'Hopkinson; Dunlop and Ozdemir, 1997). Le deuxième refroidissement vient confirmer ces observations puisqu'on observe une nette augmentation de susceptibilité dès 580°C.

Lorsqu'on mesure ces mêmes types d'échantillons sous atmosphère neutre, les variations de $K(T)$ sont environ dix fois plus faibles et donc plus bruitées (Fig. IV.18b, c et e). On observe néanmoins des températures de déblocage (ou d'altération thermique) des sulfures vers 350°C pour les 2 tronçons, ainsi qu'une perte totale de la susceptibilité légèrement avant 600°C, soulignant la présence de (titano-) magnétite et l'absence d'hématite. Pour l'échantillon T1-337, il se forme peu de minéraux ferrimagnétiques puisque les courbes d'aller-retour sont très proches les unes des autres. En revanche, pour l'échantillon T1-455, on observe une courbe de retour deux fois plus susceptible. Les 2 tronçons présentent donc le même type de mélange de minéraux ferrimagnétiques, mais T1-455 possède plus de réactivité à l'oxydation que T1-337.

4.4.1.5. Spectres de coercivité

Nous avons tenté de caractériser la minéralogie magnétique par une reconstitution des populations de grains, mises en évidence à partir des spectres de coercivité (Fig. IV.19). La dérivée première, par rapport au champ appliqué, des courbes de désaimantation de la rémanence naturelle (spectre de coercivité naturel) et anhystérétique (spectre de coercivité artificiel) ont subi le traitement selon la méthode de Kruiver et al. (2001), reprise par Heslop et al. (2002) et Egli (2003) destinée à l'origine à l'étude des courbes d'aimantation progressive de l'ARI.

Dans la limite de notre désaimanteur LDA-3 (champ AF maximum de 0,1T), deux populations distinctes, apparaissent. La famille de plus haute coercivité est particulièrement sensible à une aimantation artificielle. Ces particularités pourraient suggérer que la famille de plus faible coercivité (Fig. IV.19; population rouge) est plutôt composée de sulfures de fer et que la famille de plus haute coercivité (Fig. IV.19; population bleue) contient plutôt des oxydes de fer car la coercivité des sulfures de fer semble légèrement plus faible que celle de la magnétite (Dunlop and Ozdemir, 1997). En intégrant tous les spectres de coercivités (naturels et artificiels) provenant des différents échantillons d'un même tronçon (Fig. IV.20), on retrouve la même évolution qu'en figure IV.19, avec deux familles principales de basse et moyenne coercivités pour une fenêtre de champ allant jusqu'à 100 mT. Un effet de taille peut aussi plaider pour cette distribution en deux populations distinctes où les sulfures de fer peuvent être d'une taille proche des SD et les oxydes de fer peuvent être d'une taille proche des MD?



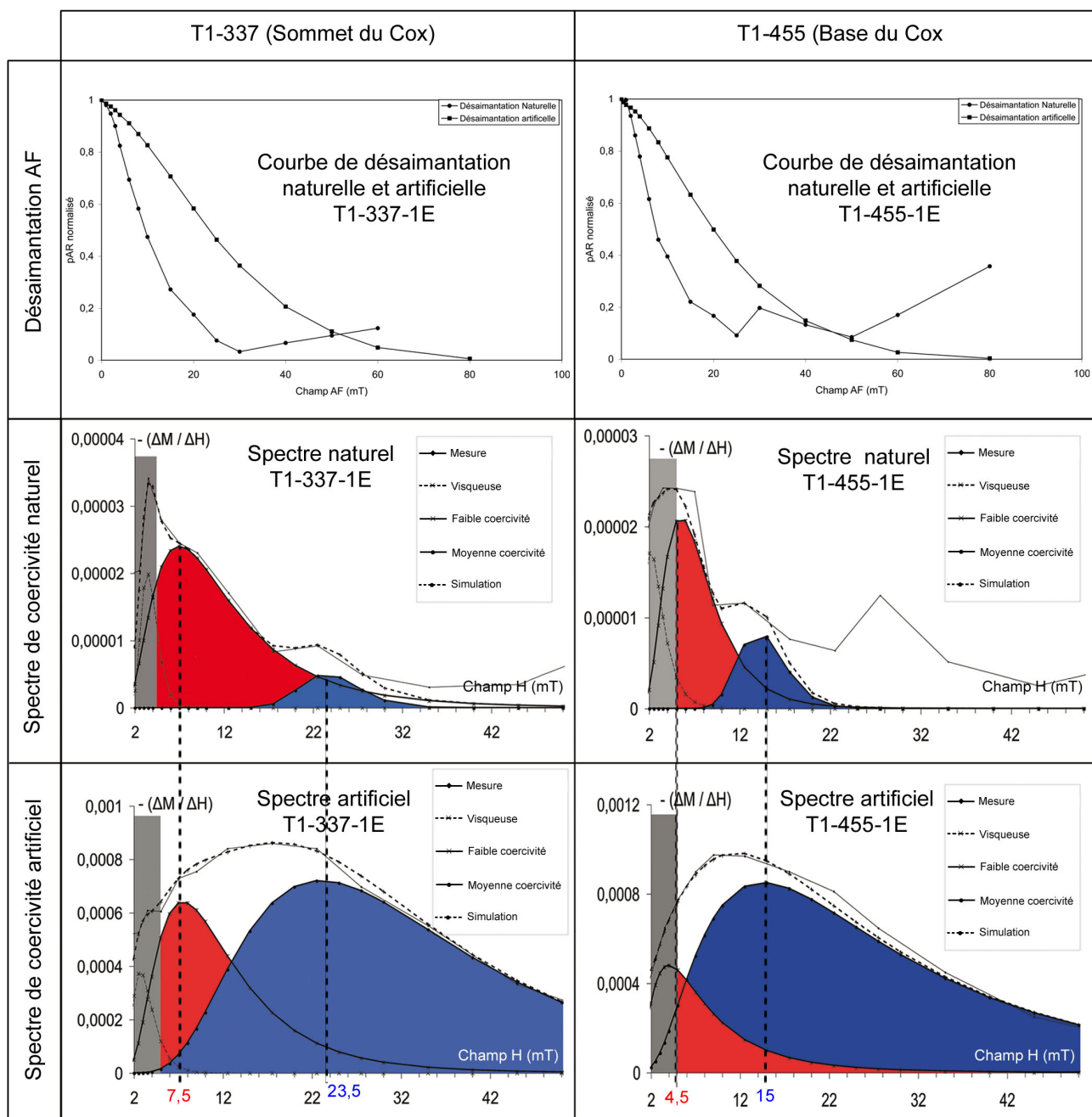


Figure IV.19: Exemple de recombinaison des spectres "naturel" et "artificiel" d'un échantillon par une somme de populations supposées log normales.

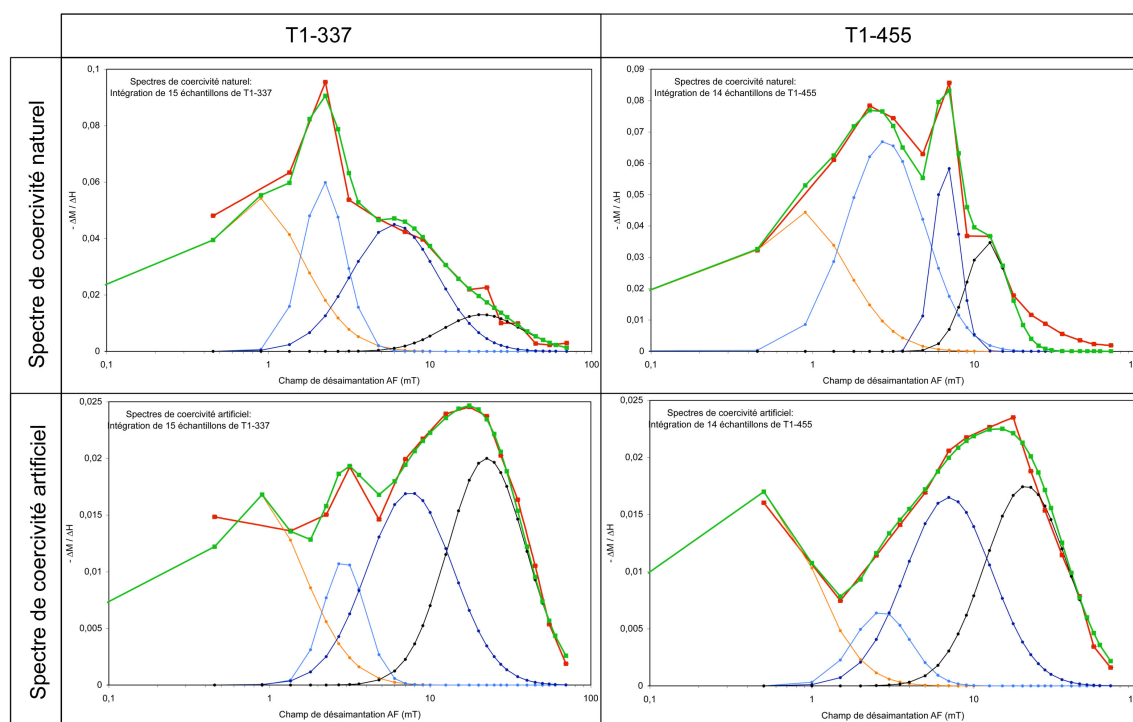


Figure IV.20: Empilement des spectres de coercivité “naturels” et “artificiels” de tous les échantillons des tronçons T1-337 et T1-455.

La famille prédominante (contribution de 70 à 80%) centrée autour de 40-45 mT est un mélange des deux familles repérées par l'analyse précédente (Fig. IV.20). La coercivité des sulfures de fer étant proche de celle des magnétites, il est difficile d'attribuer de façon certaine une nature minéralogique à chaque famille. Nous verrons cependant que les vecteurs rémanents naturels (voir chap. IV.4.4.2), distribués de manière aléatoire dans les familles de “haute” coercivité, viennent renforcer, par leur origine détritique probable, l'hypothèse que se sont les oxydes de fer qui peuplent la famille de plus haute coercivité. Il est malgré tout entendu que certains grains d'oxydes de fer peuvent être authigènes et que quelques sulfures de fer peuvent être détritiques. Pour les plus fortes valeurs du champ, les courbes d'aimantation rémanente isotherme (ARI) progressive, couplées aux traitements proposés par Heslop et al. (2002) à l'aide de son logiciel (www.geo.uu.nl/~forth/irmunmix), montrent la présence d'une famille de coercivité centrée autour de 110 mT dont la contribution est modérée (22 à 30%; Fig. IV.21).

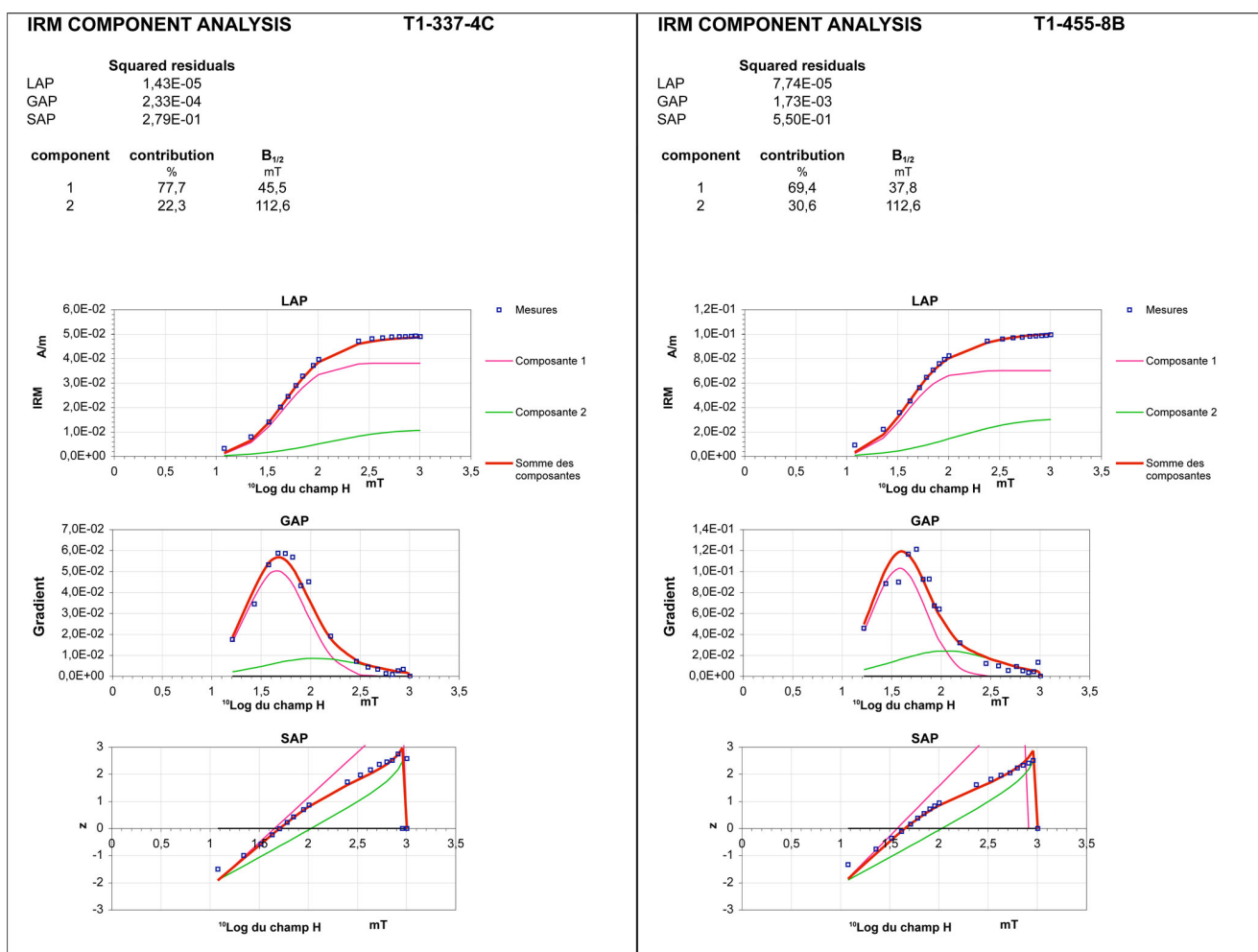


Figure IV.21: Analyses de l'ARI par le logiciel IRMUNMIX (Kruiver et al., 2001) appliqués à deux échantillons (tronçons T1-337 et T1-455).

Les minéralogies, visuellement repérées au MEB (microscope électronique à balayage), viennent justifier nos assertions sur les oxydes de fer d'origine détritique et les sulfures de fer authigènes (Table de photos ci-dessous).

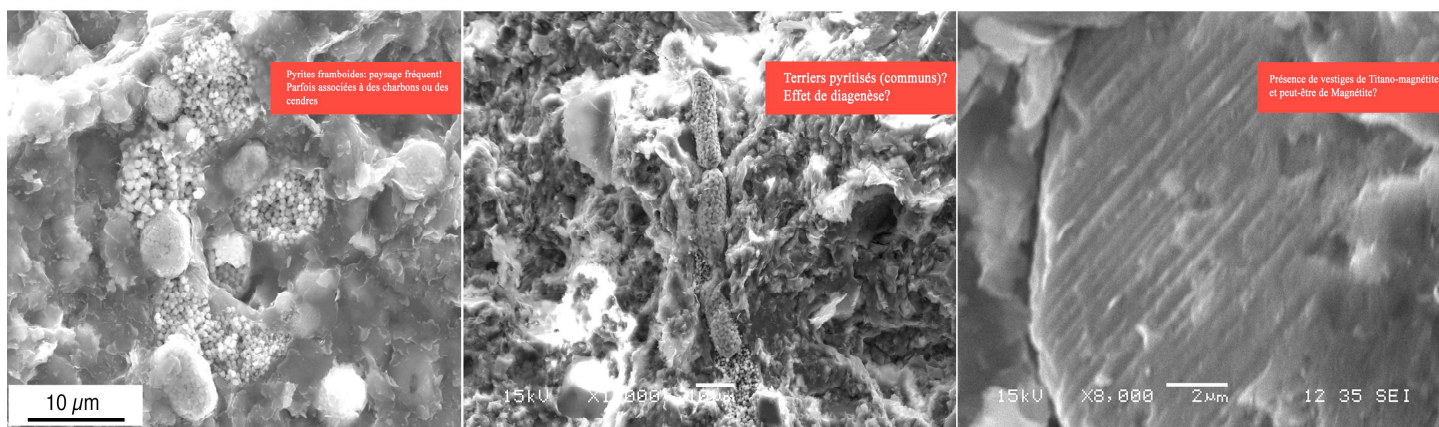


Table de photos: Observation des sulfures de fer et des oxydes de fer au MEB dans les argilites du Callovo-Oxfordien. a) pyrites framboïdes de différentes tailles; b) terrier pyritisé et c) grain détritique d'oxyde de fer (magnétite?).

4.4.2. Utilisation de l'orientation du vecteur rémanent

Nous savons que les minéraux magnétiques de l'argilite sont incapables d'enregistrer des champs magnétiques très anciens à cause, entre autres, de leur faible coercivité. Malgré tout, lorsqu'on étudie le vecteur rémanent par désaimantation AF progressive, on constate une évolution de l'intensité et de l'orientation du vecteur rémanent. Les vecteurs rémanents partiels (i.e. obtenus après chaque palier de désaimantation) sont classiquement représentés dans un diagramme de Zijdeveld (Zijdeveld, 1967; Tauxe, 1998) qui visualise, en deux dimensions, les projections de ces vecteurs de l'espace à trois dimensions. Nous présentons une représentation légèrement modifiée qui visualise les composantes du vecteur rémanent dans les trois plans de projections perpendiculaires de l'échantillon (Fig. IV.22a).

Dans l'exemple de la figure IV.22, l'échantillon T1-455-1E a été analysé afin de mesurer l'orientation du vecteur rémanent partiel (compris dans une fenêtre de coercivité spécifique). Pour cela, nous avons utilisé le logiciel d'analyse en composantes principales IAPD (Interactive analysis of paleomagnetic data) qui permet de calculer l'écart angulaire maximum du vecteur (site: www.geodynamics.no/iapd/) et indique donc l'erreur avec laquelle cette moyenne a été obtenue. Les deux populations minérales repérées dans les spectres de coercivité (Fig. IV.19) transparaît également dans l'orientation moyenne du vecteur rémanent de chaque population de coercivité, fournissant une composante de faible coercivité (S: population rouge attribuée aux sulfures de fer et une composante de haute coercivité (H: population bleue attribuée aux oxydes de fer). Pour chaque échantillon d'un même tronçon, ces données sont représentées sur un diagramme d'orientation (Fig. IV.22b).

Dans les échantillons du tronçon T1-455, les oxydes de fer attribués à la famille de haute coercivité, ont des vecteurs rémanents distribués aléatoirement (Fig. IV.22b). Nous pensons que les grains qui composent cette fraction sont porteurs d'un vecteur rémanent qui pré-date leur dépôt. Si tel est le cas, ils soulignent leur caractère détritique peu aimanté. Au contraire, les vecteurs de la fraction de moyenne coercivité sont tous orientés dans la même direction et sont proches de l'inclinaison de Nord actuel de Bure, qui est de 65° (Tableau IV.4). Ils soulignent donc plutôt un caractère peu détritique (plus récent) et renforce l'hypothèse d'attribution des sulfures de fer à cette fraction de moyenne coercivité. Cette dernière famille est donc utilisée comme "boussole" pour réorienter les échantillons issus des forages verticaux (§ IV.4.4.4.). La fraction de faible coercivité (et/ou visqueuse) a des vecteurs rémanents orientés de manière aléatoire, vraisemblablement à cause de la mauvaise cristallisation de ses minéraux et donc de leur mauvaise capacité à mémoriser un champ magnétique. Ce type de comportement se répète de la même manière pour tous les autres tronçons.

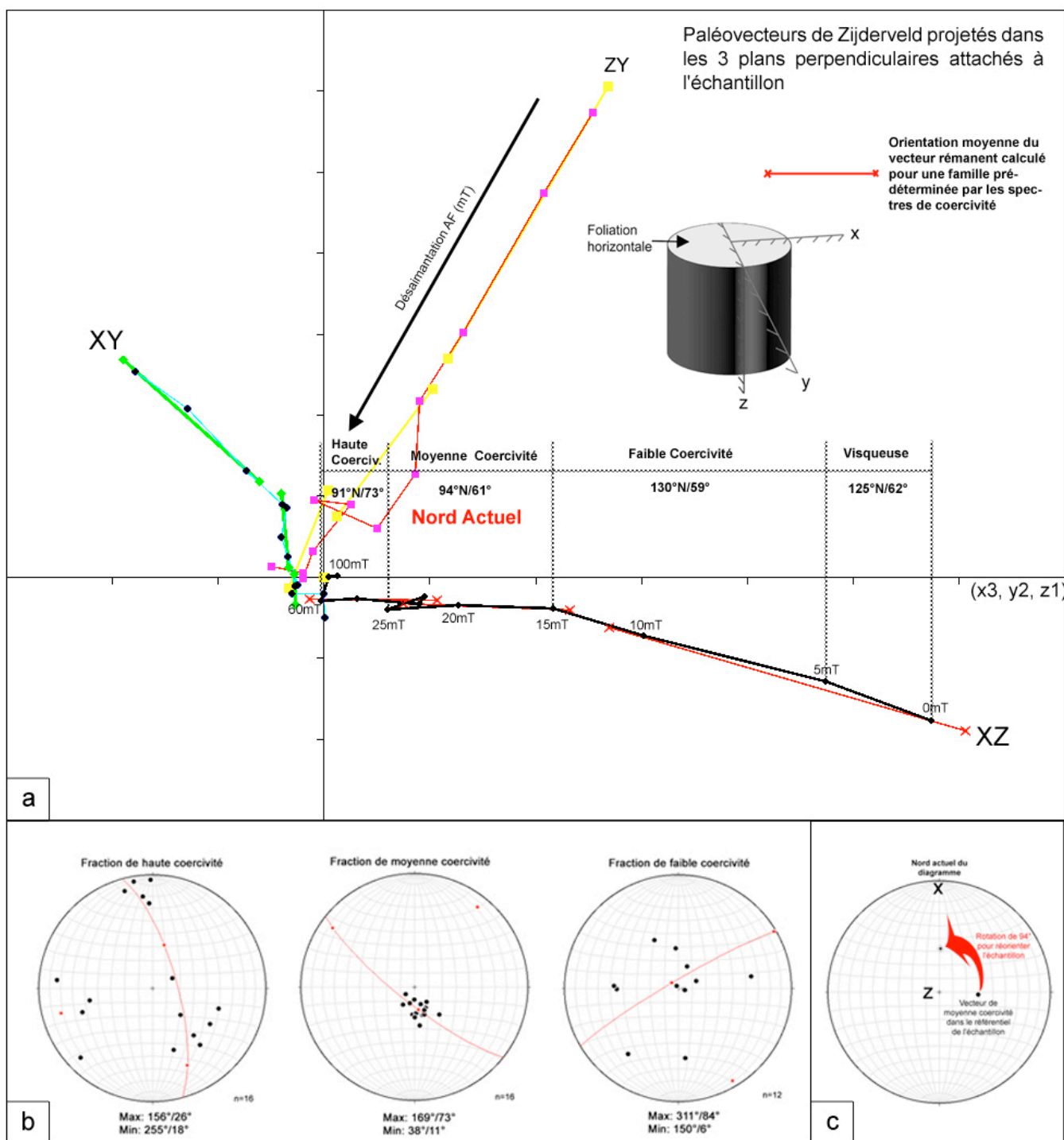


Figure IV.22: Analyse du vecteur de la rémanence d'un échantillon de T1-455. a) Représentation au cours des paliers de désaimantation (Zijderveld, modifié); b) Diagrammes d'orientation des trois composantes principales, correspondant aux principales fractions coercitives; c) Réorientation dans le référentiel géographique en utilisant la fraction portant la mémoire du Nord.

4 – Apports du magnétisme dans les argilites

T1-337					T1-455				
	Fenêtre coercitive	Dec	Inc	MAD		Fenêtre coercitive	Dec	Inc	MAD
1B	0-4 mT	101	68	14	1E	0-4 mT	121	76	7
	6-10 mT	169	74	4		6-10 mT	164	69	7
	20-40 mT	110	75	14		20-40 mT	354	20	32
1D	0-4 mT	200	81	8	2A	0-4 mT	235	83	10
	6-10 mT	199	58	11		6-10 mT	184	70	5
	20-40 mT	340	63	24		20-40 mT	140	35	32
1E	0-4 mT	268	81	17	2C	0-6 mT	205	79	0
	6-10 mT	205	80	3		6-10 mT	173	72	0
	20-40 mT	161	62	14		20-30 mT	107	39	20
2A	0-6 mT	167	40	0	3A	0-4 mT	87	84	13
	6-15 mT	175	77	0		6-10 mT	151	73	6
	20-30 mT	184	71	15		20-40 mT	358	26	37
2E	0-4 mT	100	88	17	3B	0-4 mT	135	56	13
	6-10 mT	129	71	10		6-10 mT	229	82	6
	20-40 mT	153	56	27		20-40 mT	139	44	37
3E	0-4 mT	126	-64	25	3E	0-4 mT	211	83	13
	6-10 mT	164	30	0		6-10 mT	160	69	5
	20-40 mT	48	33	28		20-40 mT	179	-5	27
4A	0-4 mT	275	53	28	4E	0-4 mT	116	77	4
	6-10 mT	170	55	9		6-10 mT	176	71	4
	20-40 mT	256	76	22		20-40 mT	122	40	33
4B	0-4 mT	60	-41	26	5E	0-4 mT	196	85	6
	6-10 mT	43	-35	9		6-10 mT	138	63	1
	20-40 mT	172	66	17		20-40 mT	259	43	27
4E	0-4 mT	32	50	29	6A	0-6 mT	85	86	0
	6-10 mT	209	14	14		6-15 mT	141	76	0
	20-40 mT	355	55	17		20-30 mT	344	12	28
5E	0-4 mT	166	86	4	6E	0-4 mT	42	88	6
	6-10 mT	138	-47	33		6-10 mT	213	75	5
	20-40 mT	198	41	26		20-40 mT	226	13	45
6E	0-4 mT	301	66	11	7B	0-4 mT	1	-74	18
	6-10 mT	190	70	21		6-10 mT	196	78	10
	20-40 mT	188	47	17		20-40 mT	275	17	24
7E	0-4 mT	330	83	6	8E	0-4 mT	160	70	15
	6-10 mT	137	56	20		6-10 mT	160	77	7
	20-40 mT	128	54	39		20-40 mT	161	42	18
8A	0-6 mT	168	68	0	9E	0-4 mT	143	67	20
	6-10 mT	63	66	0		6-10 mT	172	62	9
	20-30 mT	207	43	7		20-40 mT	64	74	11
8E	0-4 mT	348	89	16	10A	0-4 mT	125	33	25
	6-10 mT	145	75	8		6-10 mT	180	81	2
	20-40 mT	174	37	34		20-40 mT	134	62	35
9E	0-4 mT	151	74	7	11A	0-6 mT	189	83	0
	6-10 mT	93	-59	23		6-15 mT	179	68	0
	20-40 mT	4	42	42		6-30 mT	251	35	33
T1-562					T1-455				
	Fenêtre coercitive	Dec	Inc	MAD		Fenêtre coercitive	Dec	Inc	MAD
1E	0-4 mT	224	78	9	11E	0-4 mT	328	86	8
	6-10 mT	311	82	2		6-10 mT	156	72	10
	20-40 mT	97	39	32		20-40 mT	170	-5	18
2E	0-4 mT	253	84	7	12D	0-4 mT	304	-82	25
	6-10 mT	338	84	4		6-10 mT	184	75	6
	20-40 mT	3	38	35		20-40 mT	173	57	29
11E	0-4 mT	125	84	3					
	6-10 mT	17	84	3					
	20-40 mT	325	43	25					

Tableau IV.4: Analyse IAPD (www.geodynamics.no/iapd/) des vecteurs rémanents de chaque famille repérée précédemment par spectre de coercivité, pour T1-337, T1-455 et T1-562. Dec, Inc représentent la déclinaison et l'inclinaison du vecteur et MAD est son écart angulaire statistique maximum.

L'étude des vecteurs rémanents de ces tronçons montre que les échantillons argilo-carbonatés du sommet du Callovo-Oxfordien ont des orientations en "zig-zag" au-dessus de 40-50 mT de désaimantation AF (Fig. IV.23a). Cet effet, appelé gyrorémanence (Butler, 1992; Snowball, 1997) correspond à l'apparition d'une aimantation perpendiculaire à l'axe de rotation de l'échantillon. Il vient renforcer l'hypothèse de la présence de greigite, l'un des rares minéraux pouvant générer ce type de ré-aimantation spontanée au cours de la rotation du magnétomètre tournant (Hu et al., 1998; Sagnotti and Winkler, 1999; Stephenson and Snowball, 2001).

L'échantillon plus argilo-silteux de la base du Callovo-Oxfordien (T1-455-1E; Fig. IV.23b) ne montre pas cet effet de gyrorémanence, ce qui suggère son absence, ou bien une cristallisation insuffisante de la phase minérale gyrorémanente pour avoir une répercussion sur le signal de la rémanence. En conclusion, les échantillons du sommet de la formation ne sont pas exploitables pour le paléomagnétisme sensu-stricto, à cause de la greigite (Jiang et al., 2001). Les échantillons plus silteux semblent plus propices à de telles études.

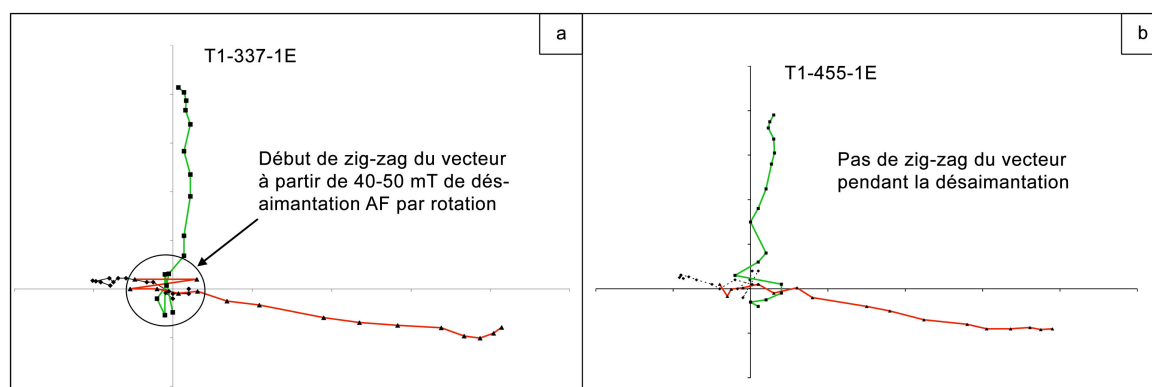


Figure IV.23: Représentation du vecteur rémanent obtenu après désaimantation AF. a) Échantillon T1-337-1E; et b) échantillon T1-455-1E. Le trait rouge est la projection du vecteur sur le plan zx, le trait vert, sur le plan zy et le trait noir, sur le plan xy.

4.4.3. Réorientation des échantillons

On peut toujours connaître la polarité et éventuellement l'inclinaison des tronçons issus des forages mais leur orientation par rapport au Nord est inconnu. Des génératrices communes aux échantillons ont été choisies arbitrairement et tracées lors de leur préparation sur les tronçons de forage. Il faut donc les ré-orienter par rapport au Nord, pour comparer les orientations des tronçons d'un même forage ou d'un forage à l'autre. Pour ré-orienter les échantillons, on considère que l'azimut du vecteur rémanent (de moyenne coercivité) est parallèle à celui du Nord magnétique à Bure. Nous avons ainsi réorienté les 6 tronçons (Fig. IV.22c), soit une rotation de: 170° et 166° pour T1-337 et T1-455 (dans le sens anti-horaire), 55° (sens anti-horaire) pour T1-342, 157° pour T1-450 (sens anti-horaire), 52° pour T1-471 (sens horaire) et 35° pour T1-562 (dans le sens horaire).

4 – Apports du magnétisme dans les argilites

Ce “Nord” mesuré représente soit le Nord géographique, si l’enregistrement magnétique de nos échantillons est moyenné depuis le dernier changement de polarité (env. 1 Ma), ou bien le Nord magnétique actuel si la mémoire magnétique est réellement courte. Ce problème reste ouvert mais, dans notre cas, ceci n’a pas d’incidence sur le résultat puisque la déclinaison à Bure est de l’ordre de 2° aujourd’hui.

Notons ici que la mesure directe du vecteur de la rémanence naturelle totale donne, pour la plupart des échantillons, des résultats très proches du vecteur rémanent de moyenne coercivité (Fig. IV.24) avec: 165°N75° pour T1-337, 167°N73° pour T1-455 et 251°N89° pour T1-562. Ainsi, il suffit bien souvent de mesurer le vecteur rémanent naturel total et de considérer que le plan vertical passant par ce vecteur est le plan vertical Nord-Sud.

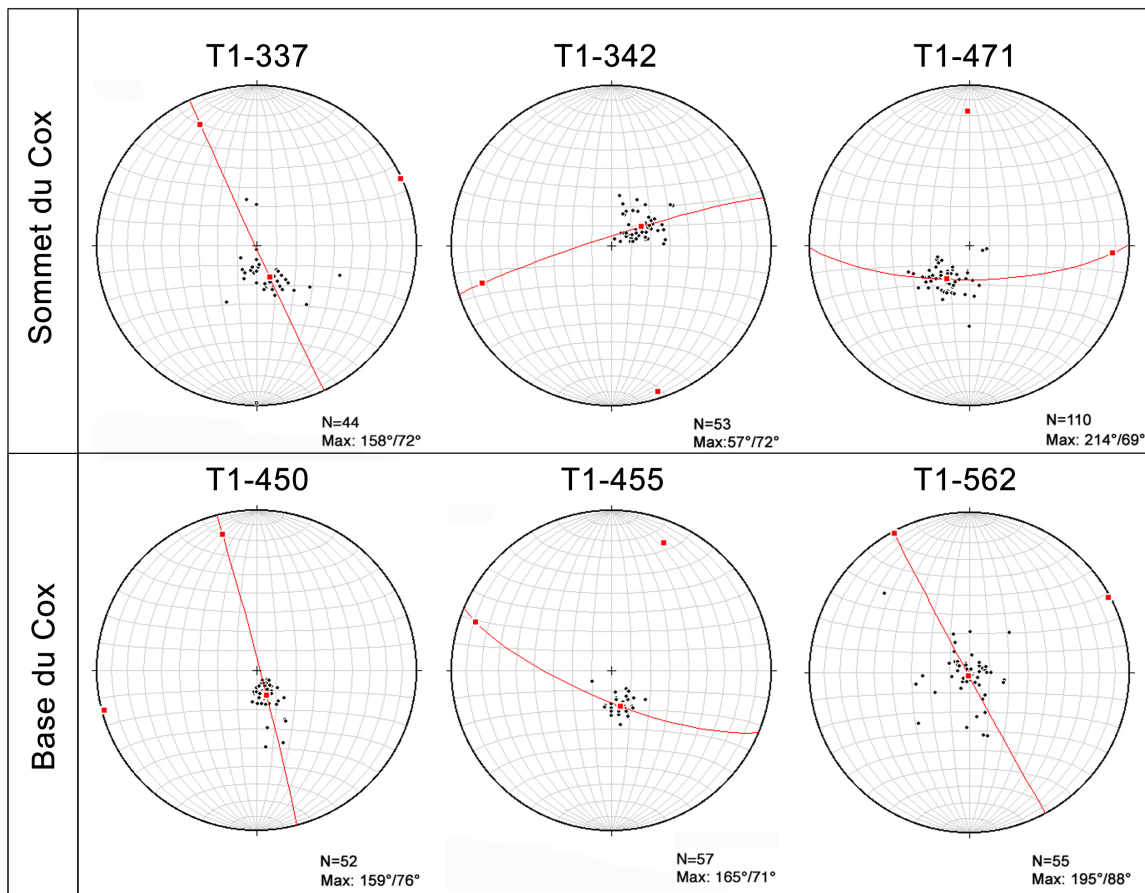


Figure IV.24: Diagrammes d’orientation; dans le référentiel “tronçon” des vecteurs rémanents naturels des échantillons de chacun des 6 tronçons. Le plan passant par le centre du diagramme et par Max, représente le plan vertical Nord-Sud. Le Nord se trouve dans le plan horizontal (= périphérie du diagramme) du même côté que Max.

4.4.4. Anisotropies magnétiques

L'organisation des minéraux a ensuite été abordée sous deux approches: l'une par l'étude de l'anisotropie de la susceptibilité magnétique (ASM) qui reflète la disposition des plaquettes d'argiles (majoritaires et paramagnétiques) dans la roche (principalement) et l'autre approche par l'étude de l'anisotropie de l'aimantation rémanente anhystérétique (AARA) qui reflète plus spécifiquement la disposition des minéraux ferrimagnétiques. Ces deux techniques, couplées à la nature des minéraux magnétiques, va permettre de mieux comprendre qu'elle est l'origine des minéraux des argilites du Callovo-Oxfordien et leur fabrique.

4.4.4.1. Résultats de l'ASM

L'anisotropie de la susceptibilité magnétique (ASM) trace l'orientation de tous les minéraux magnétiques. Tous nos spécimens ont fait l'objet d'une mesure d'ASM au KLY-3 (voir chap III.3.3.1) qui fournit, en intensités et azimuts, les trois axes principaux de l'ellipsoïde de fabrique ($K_1 \geq K_2 \geq K_3$) (Borradaile et Henry, 1997; Bouchez, 2000). On constate qu'il existe une excellente foliation magnétique, marquée par une fabrique quasi-planaire, soulignant la stratification horizontale des argiles (Tableaux IV.5 et IV.6). En effet, l'anisotropie planaire vaut au minimum 0,2% (T1-337) et au maximum 5,3% (pour T1-562) avec des moyennes pour chaque tronçon qui vont de 0,8% (T1-471) à 3,7% (T1-562). Le taux d'anisotropie planaire semble diminuer lorsque le taux de carbonate augmente (exemple pour T1-562; Fig. IV.25) et inversement, augmenter lorsque le taux d'argile augmente (exemple T1-455; Fig. IV.25). La nature de la lithologie semble donc un facteur déterminant sur le taux d'anisotropie planaire que nous relierons, au premier ordre, au taux de compaction.

La linéation, très faible, de l'ordre du ‰, amène l'anisotropie totale à être proche des valeurs de l'anisotropie planaire (Tableaux IV.5 et IV.6). Son intensité va de la limite de sensibilité de l'appareillage (de l'ordre de 0,1‰: T1-337, T1-342, T1-450, T1-455) à un maximum de 38‰ (T1-562) avec des moyennes allant de 0,9‰ (pour T1-342, T1-450 et T1-455) à 3,2‰ (pour T1-471). La linéation est mieux marquée à la base de la formation, plus silteuse, qu'au sommet, plus carbonaté. L'apport de silt suppose des courants marins plus forts que ceux qui sont responsables des niveaux pauvres en silt. Cette relation entre taux d'anisotropie et force du courant a déjà été invoquée dans le cas de sédiments récents (Kissel et al., 1997). Mais celle-ci concernait l'anisotropie planaire, et non l'anisotropie linéaire comme dans cette étude. Enfin, les intensités de ces paramètres (P, F et L) sont peu variables, ainsi que les directions des linéations, à l'intérieur d'un même tronçon, soulignant leur homogénéité à l'échelle décimétrique, d'un point de vue minéralogique et structural. Concernant ces quelques tronçons, aucune relation dans les directions de linéation n'apparaît clairement. Le diagramme de Flinn (Flinn, 1962) qui compare le taux d'anisotropie linéaire au taux d'anisotropie planaire, permet d'estimer la déformation subie par l'argilite par effets de compaction, de vitesse de courants... (Fig. IV.25). En première analyse, ce diagramme montre que les échantillons en base de formation (à l'exception de T1-562, plus carbonaté) ont une foliation bien marquée; par contre, les échantillons du sommet de la formation ont une foliation plus modérée. La linéation reste faible et assez variable dans l'ensemble des tronçons.

4 – Apports du magnétisme dans les argilites

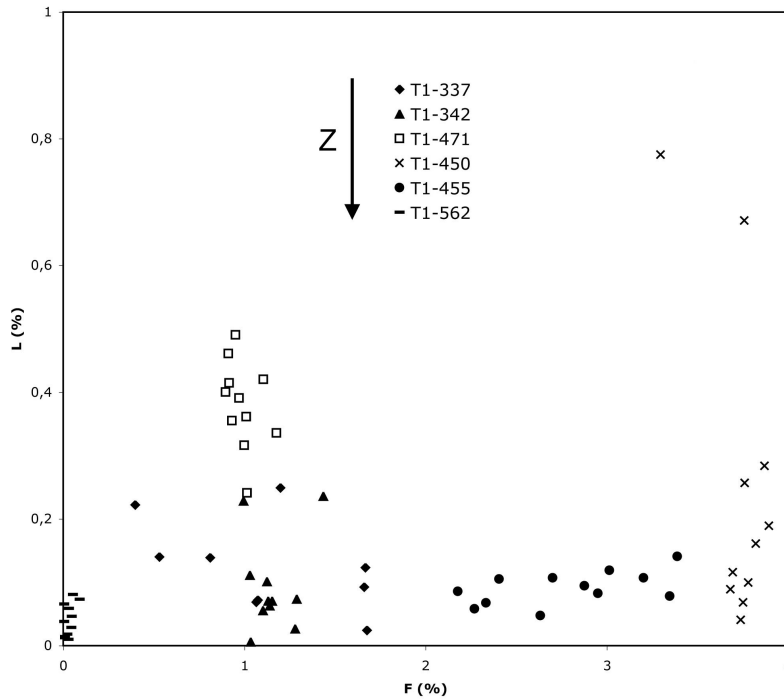


Figure IV.25: Diagramme de Flinn $L(F)$, linéation versus foliation, pour les 6 tronçons étudiés. Chaque point représente la moyenne de 6 à 8 échantillons prélevés à l'intérieur d'un même disque sur un tronçon.

Lorsqu'on compare ces données à celles de Schwehr and Tauxe (2003; Fig. IV.26), on constate que nos points sont très proches de l'origine du diagramme. Ces données nous confirment que nos argilites apparaissent comme très peu déformées. Leur anisotropie planaire est le fruit de la compaction acquise rapidement après le dépôt du sédiment, et éventuellement de la force des courants régnant au moment du dépôt. La richesse en carbonate du tronçon T1-562 rend ce niveau moins sensible à la compaction, ce qui amène les points du diagramme à être très proche de l'origine (i.e., L et F très faibles).

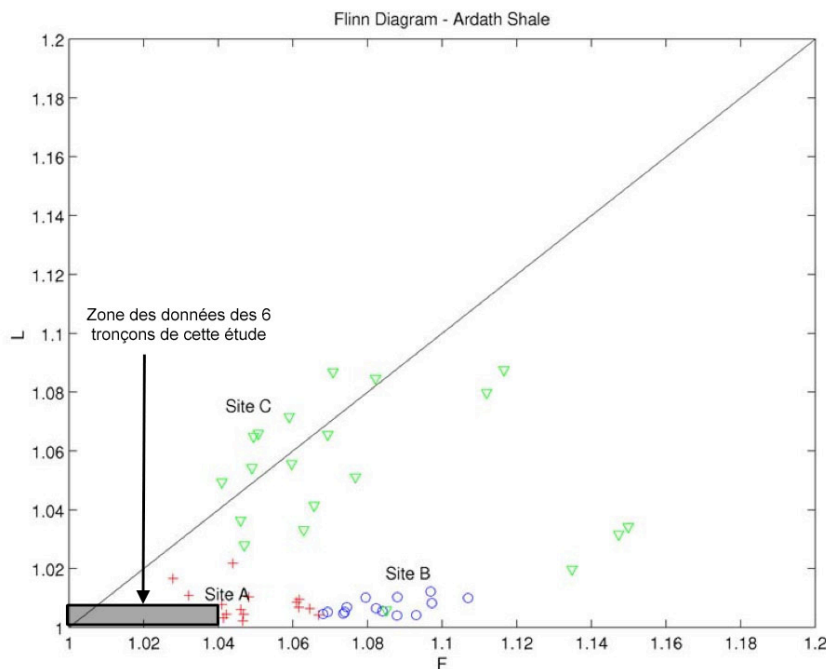


Figure IV.26: Diagramme de Flinn des données de Ardath Shale (Schwehr and Tauxe, 2003). Dans ce diagramme, $L = K_1/K_2$ et $F = K_2/K_3$.

En ce qui concerne les orientations des axes de la susceptibilité, la foliation magnétique est, comme on s'y attendait, très proche de l'horizontale (Aubourg et al., 1995; Fig. IV.27). Après réorientation, les pôles de la foliation sont subverticaux à quelques degrés près, sauf pour T1-471, échantillon pour lequel le pôle moyen se trouve à $98^{\circ}/57^{\circ}$ (Tableau IV.6).

Tout à fait remarquable est la constance directionnelle des linéations magnétiques, au moins au sein de 4 des 6 tronçons (Tableau IV.6), avec, en partant de la base de la formation: $4^{\circ}/0^{\circ}$ pour T1-562 ; $47^{\circ}/3^{\circ}$ pour T1-455, $321^{\circ}/6^{\circ}$ pour T1-450, $352^{\circ}/10^{\circ}$ pour T1-471, $296^{\circ}/2^{\circ}$ pour T1-342 et $245^{\circ}/0^{\circ}$ pour T1-337.

La distribution des orientations au sein de chaque tronçon a été analysée par les techniques de bootstrap (Constable and Tauxe, 1990), Jelinek (Jelinek, 1977 et 1978) et Hext (Hext, 1963), avec le logiciel de Constable and Tauxe (1990), qui permettent d'évaluer la qualité du signal et des orientations des données d'ASM. Il ressort que les données sont relativement bonnes pour les linéations et particulièrement bonnes pour la foliation (Fig. IV.27 et Tableau associé).

Ces résultats complètent les moyennes tensorielles calculées précédemment (Fig. IV.27 et Tableau associé), montrant une variabilité qui est inférieure à 5° pour les échantillons de la base de la formation et qui est $\pm 20^{\circ}$ pour les échantillons du sommet de la formation. Il semble donc que la compaction, qui tend à augmenter la variabilité directionnelle de la linéation magnétique, a paradoxalement moins d'influence sur les échantillons profonds que sur ceux du sommet de la formation. A moins que la dilution par les carbonates (diamagnétiques) tende à diminuer le signal, qui devient plus variable dans les échantillons du sommet de la formation, riche en carbonates. Les histogrammes des valeurs des axes principaux de l'ellipsoïde d'ASM (Fig. IV.27) montrent une forme très aplatie (K_1 bien écarté), et peu anisotrope dans le plan de litage (puisque K_2 et K_3 se chevauchent). Le tronçon T1-471 est le seul à posséder une linéation et une foliation qui ne sont pas dans le plan horizontal. Par contre, les orientations de ces éléments structuraux sont particulièrement groupées et peu variables. Nous pensons qu'à ce niveau la formation est traversée par une petite fente cicatrisée, avec un effet de déformation sur les bords immédiats de la faille. Pourtant, aucune faille n'a été repérée dans ce secteur. La question reste ouverte sachant que la taille de la fente supposée est peut-être de taille inférieure à la résolution des appareils de mesures.

4 – Apports du magnétisme dans les argilites

T1-337	Population	Km	K1 Dec	K1 Inc	K2 Dec	K2 Inc	K3 Dec	K3 Inc	P%	L%	F%	T	Pflinn
1	4	89	159	8	69	1	165	82	1,15	0,07	1,07	0,874	0,067
2	5	76	75	2	345	10	153	79	1,45	0,25	1,20	0,654	0,208
3	5	21	50	5	319	8	175	80	0,62	0,22	0,40	0,280	0,562
4	5	22	70	3	160	2	286	87	0,67	0,14	0,53	0,580	0,265
5	5	22	313	4	43	6	191	83	1,13	0,07	1,07	0,878	0,064
6	5	49	99	2	9	6	171	84	1,70	0,02	1,68	0,971	0,015
7	5	84	147	7	57	3	173	83	1,79	0,12	1,67	0,861	0,074
8	5	64	58	5	327	10	173	79	1,76	0,09	1,66	0,893	0,056
9	5	25	64	0	334	5	157	85	0,95	0,14	0,81	0,706	0,172
Total	44	50	143	7	232	2	158	82	1,25	0,13	1,12	0,74	0,165

T1-342	Population	Km	K1 Dec	K1 Inc	K2 Dec	K2 Inc	K3 Dec	K3 Inc	P%	L%	F%	T	Pflinn
1	5	48	338	3	68	1	168	87	1,22	0,07	1,15	0,884	0,061
2	4	60	295	4	25	7	173	82	1,36	0,07	1,29	0,891	0,057
3	5	70	317	4	47	0	143	86	1,20	0,06	1,14	0,894	0,056
4	5	70	195	1	285	1	60	88	1,31	0,03	1,28	0,958	0,021
5	5	61	151	1	61	0	330	89	1,67	0,24	1,43	0,716	0,165
6	5	72	101	2	11	3	230	86	1,23	0,10	1,12	0,833	0,090
7	5	65	258	1	348	1	118	88	1,20	0,07	1,13	0,882	0,062
8	5	67	343	2	253	0	163	88	1,16	0,06	1,10	0,903	0,051
9	5	67	279	1	9	3	176	87	1,14	0,11	1,03	0,804	0,108
10	4	64	260	1	350	2	153	88	1,23	0,23	0,99	0,625	0,230
11	5	66	243	3	333	3	110	86	1,04	0,01	1,03	0,988	0,006
Total	53	65	358	2	88	1	213	88	1,25	0,10	1,16	0,85	0,083

T1-471	Population	Km	K1 Dec	K1 Inc	K2 Dec	K2 Inc	K3 Dec	K3 Inc	P%	L%	F%	T	Pflinn
1	5	77	205	10	108	32	310	56	1,32	0,32	1,00	0,518	0,317
2	5	79	204	11	107	30	312	58	1,37	0,36	1,01	0,471	0,359
3	5	70	206	9	109	33	309	55	1,37	0,39	0,97	0,425	0,403
4	5	81	205	8	110	28	309	60	1,29	0,36	0,93	0,446	0,382
5	5	79	207	8	112	27	312	61	1,33	0,41	0,92	0,375	0,453
6	5	73	205	10	109	29	311	59	1,53	0,42	1,10	0,447	0,381
7	5	67	198	14	99	31	310	56	1,52	0,34	1,18	0,555	0,285
8	5	75	203	11	106	32	310	55	1,38	0,46	0,91	0,327	0,506
9	5	76	207	9	112	27	314	61	1,45	0,49	0,95	0,318	0,516
10	5	80	205	10	109	32	310	56	1,30	0,40	0,90	0,382	0,446
11	5	75	205	10	107	38	307	50	1,26	0,24	1,01	0,614	0,238
Total	55	76	204	10	108	31	310	57	1,37	0,38	0,99	0,44	0,390

T1-450	Population	Km	K1 Dec	K1 Inc	K2 Dec	K2 Inc	K3 Dec	K3 Inc	P%	L%	F%	T	Pflinn
T1-01	5	105	336	3	66	1	175	87	4,45	0,67	3,76	0,693	0,179
T1-02	5	106	323	3	54	2	185	87	3,99	0,16	3,82	0,918	0,042
T1-03	2	103	290	0	20	4	198	86	3,82	0,07	3,75	0,964	0,018
T1-04	5	105	336	3	66	3	198	86	4,10	0,78	3,30	0,615	0,235
T1-05	5	107	315	2	45	3	189	86	3,78	0,04	3,74	0,978	0,011
T1-06	5	107	267	0	357	3	181	87	3,82	0,12	3,70	0,938	0,031
T1-07	5	107	280	1	10	3	176	87	3,77	0,09	3,68	0,952	0,024
T1-08	5	103	270	0	360	3	178	87	3,88	0,10	3,78	0,948	0,026
T1-09	5	106	319	3	50	3	190	86	4,03	0,26	3,76	0,870	0,068
T1-10	5	106	329	2	59	3	204	86	4,17	0,28	3,87	0,861	0,073
T1-11	5	105	258	2	348	2	210	88	4,09	0,19	3,89	0,906	0,049
Total	52	106	303	2	213	2	166	87	3,99	0,25	3,73	0,88	0,069

T1-455	Population	Km	K1 Dec	K1 Inc	K2 Dec	K2 Inc	K3 Dec	K3 Inc	P%	L%	F%	T	Pflinn
T1-01	5	116	33	4	303	2	186	86	3,54	0,14	3,39	0,919	0,042
T1-02	5	110	53	2	323	3	181	86	3,31	0,11	3,20	0,934	0,034
T1-03	5	119	46	3	315	3	178	85	3,43	0,08	3,35	0,953	0,023
T1-04	5	119	56	2	326	5	169	85	3,04	0,08	2,95	0,945	0,028
T1-05	5	117	59	2	328	4	174	85	3,14	0,12	3,02	0,923	0,039
T1-06	5	113	46	5	316	3	196	85	2,97	0,09	2,88	0,935	0,033
T1-07	5	99	57	3	326	5	178	84	2,81	0,11	2,70	0,923	0,040
T1-08	5	120	21	4	290	1	183	85	2,68	0,05	2,63	0,964	0,018
T1-09	5	117	57	3	326	4	185	85	2,33	0,06	2,27	0,950	0,026
T1-10	5	117	45	3	315	3	179	85	2,26	0,09	2,18	0,924	0,039
T1-11	5	118	38	3	308	3	174	86	2,51	0,11	2,41	0,915	0,044
T1-12	2	113	40	5	309	4	182	84	2,40	0,07	2,33	0,943	0,029
Total	57	115	33	3	303	4	166	85	2,87	0,09	2,78	0,94	0,033

T1-562	Population	Km	K1 Dec	K1 Inc	K2 Dec	K2 Inc	K3 Dec	K3 Inc	P%	L%	F%	T	Pflinn
T1-01	3	114	173	0	100	0	358	90	0,07	0,03	0,04	0,215	0,646
T1-02	5	112	169	0	194	0	330	90	0,04	0,01	0,03	0,481	0,351
T1-03	4	114	174	0	20	0	285	90	0,16	0,07	0,09	0,105	0,810
T1-04	4	116	167	0	283	0	176	90	0,04	0,02	0,02	0,075	0,861
T1-05	5	120	176	0	80	0	337	90	0,04	0,04	0,00	-0,813	9,693
T1-06	5	118	162	0	108	0	249	90	0,09	0,05	0,05	-0,009	1,018
T1-07	5	119	165	0	74	0	255	90	0,02	0,01	0,01	-0,151	1,357
T1-08	5	123	180	0	179	0	87	90	0,09	0,06	0,03	-0,329	1,979
T1-09	5	124	172	0	162	0	270	90	0,07	0,07	0,00	-0,890	17,252
T1-11	5	120	169	0	86	0	254	90	0,02	0,01	0,01	-0,301	1,862
T1-12	5	119	173	0	22	0	146	90	0,13	0,08	0,05	-0,209	1,530
Total	51	118	171	0	119	0	250	90	0,07	0,04	0,03	-0,17	3,396

Tableau IV.6: Moyenne par disque et par tronçon entier, des données d'ASM pour les 6 tronçons étudiés.

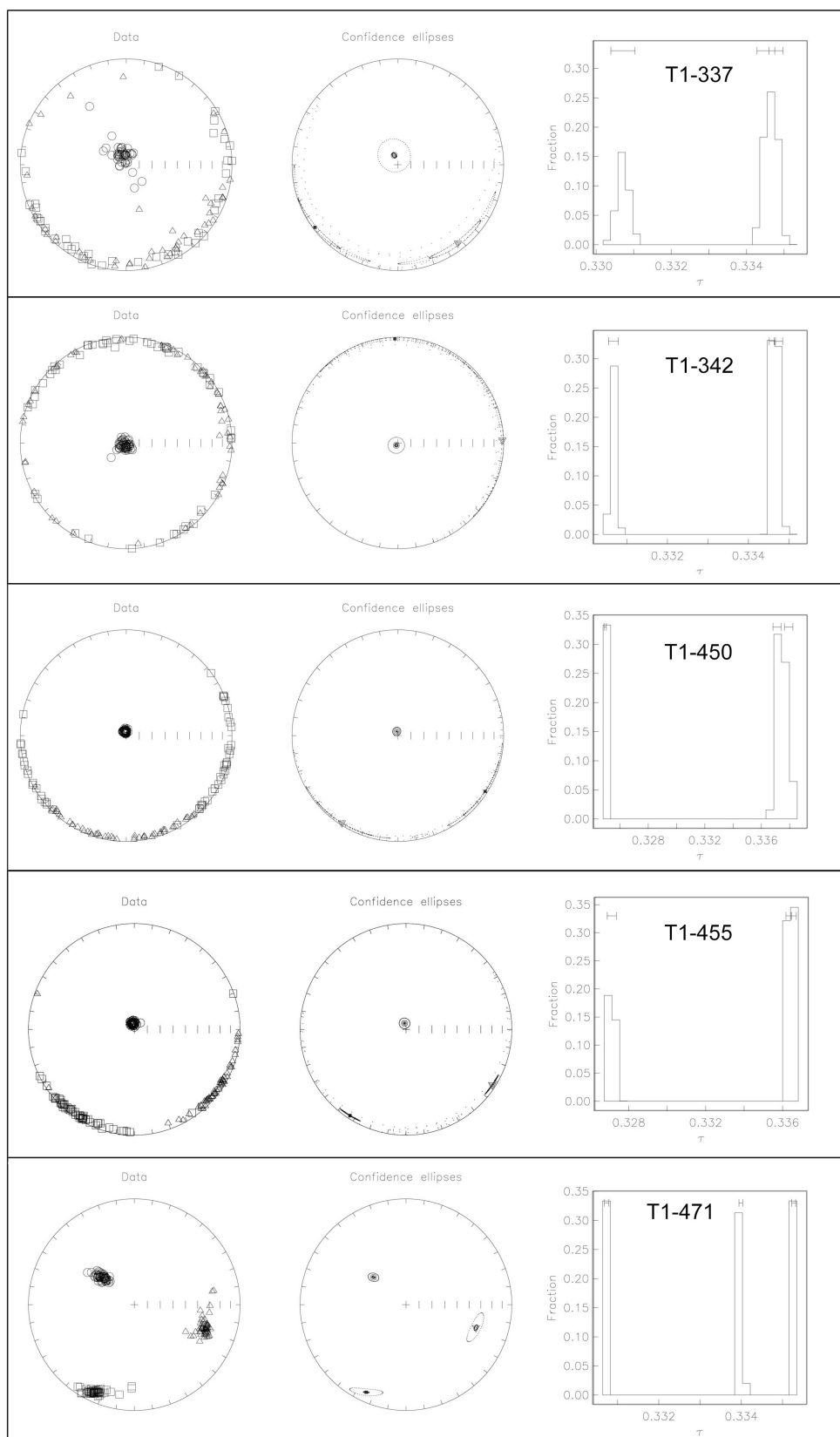


Figure IV.27: Traitement statistique des données d'ASM de 5 tronçons (6 moins T1-562) étudiés. Les orientations de l'ASM (K1: carrés; K2: triangles et K3: ronds) sont représentées sur les diagrammes "Data" et leur traitement selon les analyses de bootstrap, Jelinek et Hext sont représentés sur le diagramme des ellipses de confiance "Confidence ellipses". L'histogramme des 3 valeurs propres (K1, K2 et K3) de la matrice d'ASM est aussi tracé pour évaluer les positions relatives des 3 axes et donc la forme de l'ellipsoïde d'ASM.

4.4.4.2. Résultats de l'AARA

Si l'ensemble des minéraux magnétiques (para- et ferri-) mesurés par l'ASM possède une anisotropie planaire parallèle au plan du litage (sauf T1-471) et une anisotropie linéaire en moyenne N-S à NNE-SSO, qu'en est-il des grains ferrimagnétiques eux-mêmes? L'anisotropie de l'aimantation rémanente anhystérétique (AARA) permet de répondre à cette question (Jackson et al., 1988). Elle a été mesurée sur les tronçons T1-337 et T1-455. L'AARA révèle la fabrique de forme des minéraux ferrimagnétiques, en aimantant l'échantillon dans plusieurs directions avec le même champ et en mesurant les variations de l'aimantation acquise pour des fenêtres d'aimantation spécifiques (repérées lors des analyses des spectres de coercivité). On peut alors isoler l'orientation des minéraux ferrimagnétiques tels que les sulfures de fer (entre 5 et 15 mT) ou les oxydes de fer (entre 20 et 80 mT; Fig. IV.28).

L'AARA de plusieurs échantillons de T1-337 et T1-455 (aimantation dans 6 directions; Trindade et al., 1999) semble montrer que les linéations (K1) de la famille des sulfures de fer (Fig. IV.28a) est dans le plan de litage, mais les grains sont mal répartis dans ce plan, alors que celles des oxydes de fer est disposée sur le plan de stratification (Fig. IV.28b) et cohérent avec une direction N-S à NNE-SSO déduite de l'ASM. Cette observation renforce l'idée d'une famille diagénétique pour les sulfures de fer, et détritique pour les oxydes de fer. Dans ces échantillons, les argiles et les grains ferrimagnétiques (détritiques) ont la même direction et (peut-être) la même origine. D'autres mesures d'AARA seraient nécessaires pour confirmer la tendance que nous venons de montrer.



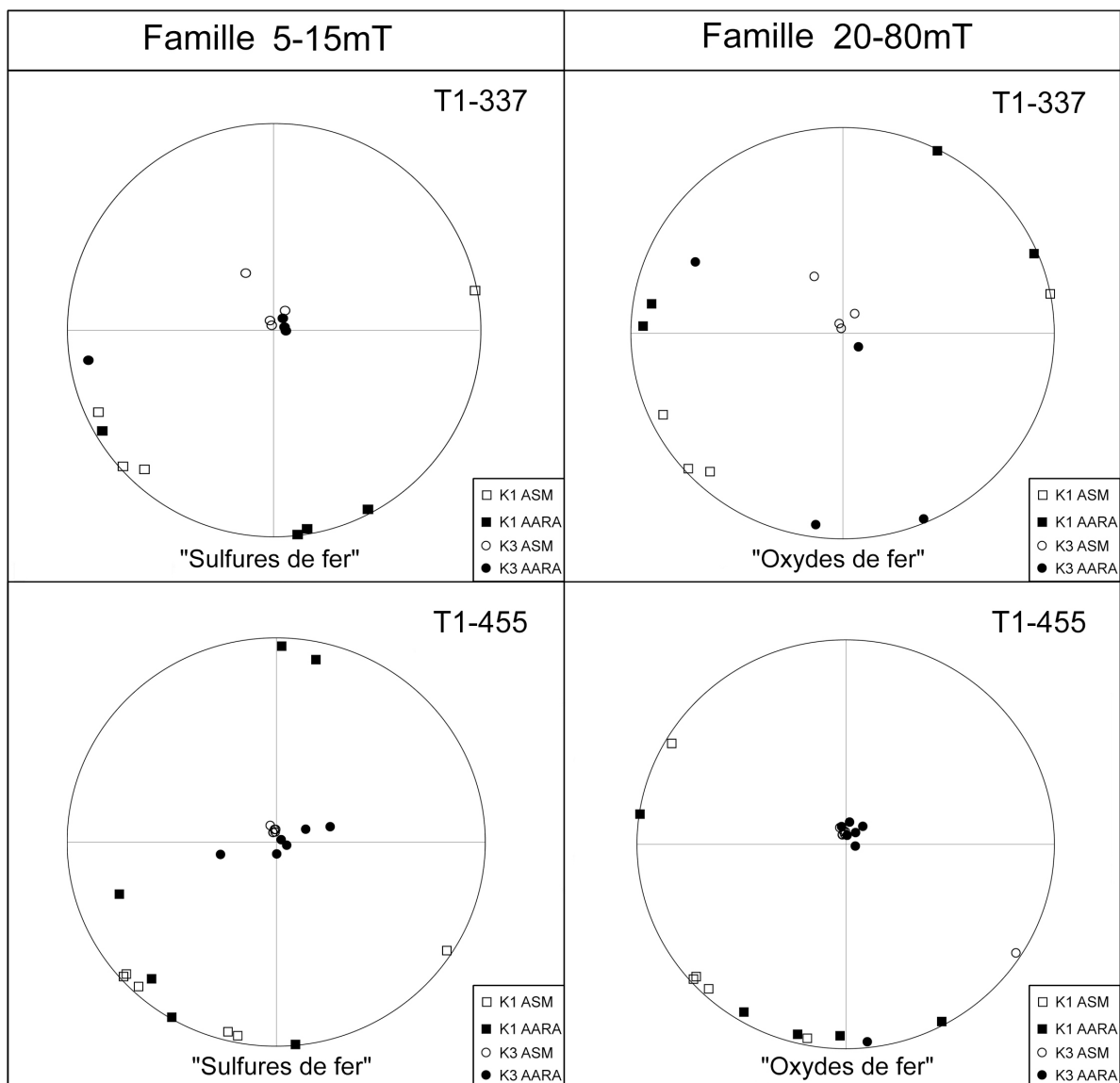


Figure IV.28: Diagrammes d'orientation des mesures d'AARA (symboles noirs) comparés aux mesures d'ASM (symboles ouverts), pour des échantillons de T1-337 et T1-455 dans la fenêtre 5-15 mT (sulfures de fer?) et 20-80 mT (oxydes de fer?).

4.5. Etude magnétique à l'échelle du forage

Une fois éprouvées les procédures de l'étude minéralogique, et une fois reconnue la stabilité de la fabrication de l'argilite à l'échelle d'un tronçon, nous avons appliqué notre approche sur la formation du Callovo-Oxfordien argileux à l'aide des forages EST211 et EST342. Ceux-ci ont ensuite été comparés entre-eux pour tenter une interprétation sur la dynamique sédimentaire du secteur d'étude.

4.5.1. Evolution minéralogique du forage EST211

La minéralogie magnétique du forage EST211 a été étudiée avec les mêmes outils que ceux que nous avons utilisés pour les tronçons de forages verticaux. Ce travail donne lieu à une publication à soumettre au *Geophysical Journal International*.

Le forage incliné EST211 traverse l'ensemble de la couche du Callovo-Oxfordien argileux qui se situe sur le site du Laboratoire de Bure (Fig. IV.1) et dont le découpage lithologique est divisé en 10 lithologies distinctes (Fig. IV.4) décrites dans le paragraphe 4.2 qui équivaut au forage EST205.

Titre: Minéralogie magnétique des argilites du Callovo-Oxfordien de l'Est du bassin de Paris (France): coexistence des sulfures de fer et des oxydes de fer. Magnetic mineralogy of Callovo-Oxfordian argillites from eastern Paris basin (France): coexisting of iron-sulphides and iron-oxides.

Résumé: Des échantillons de forage ont été collectés le long de la formation Callovo-Oxfordienne riche en argile grise dans l'Est du bassin de Paris, par un forage de l'Andra (l'Agence française pour la gestion des déchets radioactifs) et soumis à l'étude de la minéralogie magnétique et des observations au MEB, dont le but est de caractériser la nature et l'origine de la distribution de la minéralogie dans la formation.

Les échantillons des lithologies riches en argile ont de grandes variations magnétiques alors que les lithologies plus silteuses ont des propriétés constantes. Les intensités de la susceptibilité qui varient de 100 à 200 μSI (lithologies argileuses) et de 100 à 140 μSI (lithologies silteuses), soulignent une fraction paramagnétique dominante, principalement due à la fraction argileuse ferrifère (smectite, illite) formant plus de 45% du volume de la roche. Les contributions ferrimagnétiques à la susceptibilité représentent ~5% dans les lithologies argileuses et jusqu'à ~10% dans les lithologies plus silteuses et résultent de l'addition de deux fractions ou phases ferrimagnétiques caractérisées par leurs spectres de coercivité après désaimantation AF de la rémanence naturelle et artificielle, ainsi que par différents paramètres et données magnétiques acquises à basse et haute température. La fraction "soft" (i.e. de faible coercivité) apparaît systématiquement entre 15 et 30 mT, et la fraction "hard" (i.e. de plus forte coercivité) se situe entre 50 et 70 mT. Les populations à plus forte coercivité peuvent apparaître vers 250 mT avec une faible contribution (<10%).

La rémanence naturelle de la fraction soft enregistre le Nord magnétique (quasi-actuel), nous permettant de ré-orientater les échantillons, alors que les fractions hard, de plus forte coercivité, ont des directions aléatoires de leur vecteur rémanent naturel. Cette fraction soft semble reliée à des sulfures de fer diagenétiques formant souvent des framboïdes de pyrite micrométrique observés au MEB et dans lesquelles la greigite est probablement associée. La fraction hard semble reliée à des grains détritiques d'oxydes de fer plus ou moins riche en Ti, ce qui est cohérent avec les directions aléatoires du vecteur de rémanence naturelle de cette fraction.

La coexistence, dans la même roche sédimentaire, d'oxydes et de sulfures de fer, marqueurs des conditions redox environnementales, est ici reliée à des origines distinctes plutôt qu'à des changements des conditions de la sédimentation ou la diagenèse. La préservation de ces espèces minérales est attribuée à la très faible conductivité hydraulique que cette roche possède après la compaction.

Magnetic mineralogy of a borehole-core from the Callovo-Oxfordian argillites of eastern Paris Basin (France): coexisting of iron-sulphides and iron-oxides (à soumettre)

Lionel Esteban^{1&2}, Jean Luc Bouchez¹, Fabienne Vadebouin³ and Roberto Siqueira¹

¹Laboratoire des Mécanismes et Transfert en Géologie, LMTG, UMR CNRS #5563, Université Paul-Sabatier, 14 Avenue E. Belin, 31 400 Toulouse, France.

² Andra – Direction Scientifique, 92298 Chatenay-Malabry Cedex, France

³ CEREGE, Université d'Aix-Marseille 3, CNRS, 80 Europole de l'Arbois, 13545 Aix en provence, France.

esteban@lmtg.obs-mip.fr, bouchez@lmtg.obs-mip.fr, vadebouin@cerege.fr, siqueira@lmtg.obs-mip.fr

Abstract

Core-specimens collected all along the Callovo-Oxfordian dark-grey, clay-rich rocks of Eastern Paris Basin, and coming from the oblique borehole EST211 of Andra (the French radioactive waste management agency), were subjected to a thorough magnetic mineralogy study and SEM observations, with in view the characterization of the nature and origin of the ferrimagnetic fraction and the understanding of the climatic variations at the origin of the mineralogical distribution in the formation. Specimens from the clay-enriched lithologies have large magnetic variabilities while those from silt-enriched lithologies have very constant properties. Susceptibilities vary from 100 to 200 μ SI (clay-enriched lithologies) and from 100 to 140 μ SI (silt-enriched) and call for a dominant paramagnetic behaviour mainly due to the iron-bearing clay fraction (smectite, illite) that represents up to 45% of the rock-volume. The ferrimagnetic contributions to susceptibility range from \sim 5% in clay-enriched lithologies to \sim 10% in silt-enriched ones and result from the addition of two main ferrimagnetic fractions, or phases, as mostly evidenced from coercivity spectra obtained after stepwise AF-demagnetization of both the natural and the induced remanence, and also from different parameters at room-, low- and high-temperature experiments. A soft fraction systematically appears in-between 15 and 30 mT, and a hard one in-between 50 and 70 mT. A higher coercivity population may appear at \sim 250 mT with a small contribution ($<$ 10%). Interestingly, the natural remanence of the soft fraction keeps the memory of the present magnetic north, allowing core-reorientation, while the hard and very hard fractions have random NRM vectors. The soft magnetic fraction is argued to equate with the ubiquitous early diagenetic iron-sulphides that form framboidal aggregates of pyrite to which greigite seems to be associated. Likewise, the hard fraction is equated with the less abundant Ti-Fe-oxide clastic grains, a fact consistent with the random NRM vectors. Coexistence in the same sediment of iron-sulphides and iron-oxides, classical environmental markers of redox conditions, relates to distinct origins, authigenic and detrital respectively, rather than to changing conditions during sedimentation or diagenesis. Their preservation is attributed to the very low hydraulic conductivity acquired by the rock after sedimentary compaction.

Keywords: *magnetic-mineralogy; clay-sediment; Jurassic; iron-sulphide and iron-oxide*

1. Introduction

A unique opportunity of obtaining preserved specimens from Jurassic clay-rich rocks from eastern Paris Basin was provided through cores that were drilled by the French Agency for radioactive waste management (Andra). This sampling was realized in the frame of a reconnaissance study that now leads to the building of ~500 m-deep Laboratory, close to the village of Bure (Fig. 1) and devoted to scientifically test the storage feasibility of high activity nuclear wastes.

The carbonaceous platforms of the Middle Jurassic of western Europe suffered a brutal increase of the sea-level along with rather anoxic conditions, 156 Ma ago according to Palfy et al. (2000), at the beginning of the Callovian, a change recently re-dated at 164.4 ±3.8 Ma (Andra, 2005). This change is attributed to the onset of opening of the Central Atlantic and to the North Tethysian rifting (Lemoine and de Gracianski, 1988). The period elapsing from the Callovian (164-159 Ma) to the Middle Oxfordian (159-156 Ma; Andra, 2005) is marked by a very high rate of space accommodation (20 m/Ma to more than 30 m/Ma) corresponding to a transgressive event of second order. This event began after the Dogger platform and lasted about 4.5 Ma (Pellenard, 2003) before the re-installation of the Oxfordian platform, and started with a slight subsidence beginning with shallow marine sediments made of silt, clay and carbonate particles that were supplied from the surrounding massifs. During the Callovian and beginning of the Oxfordian, dark- to light-grey silty marls were deposited, called Callovo-Oxfordian argillites. This clay-rich formation is about 130 m-thick at the site of the Laboratory, reaching 160 m a few tens of kilometers to the north, due to a subsident regime controlled by a NW-SE directed flexural trend.

Although apparently homogeneous, these argillites yield some variations allowing large-scale correlations, such as the Maximum Clay Zone (MCZ; Gaucher et al., 2004) in the middle of the formation (45-50% of clay minerals) attributed to the maximum flooding surface of the Early Oxfordian Mariae Zone (Andra, 2005) due to the connection between the Central Atlantic and the Paris Basin. In addition, centimeter-thick levels of bentonite, resulting from the argilization of volcanic ashes, helped correlating the Paris Basin with the Provence Basin to the south (Pellenard et al., 1999). In the region of Bure, according to pyrolysis data of the organic fraction and to fluid inclusion studies, the argillites never reached 50°C in temperature nor have been buried deeper than 800 m (Landais and Elie, 1999, and Aytougougdal et al., 1996) conditions that helped the argillites to suffer only slight diagenesis (Rousset and Clauer, 2005).

The confinement properties of argillites are primarily controlled by their low hydraulic conductivity, on the order of 10^{-13} - 10^{-14} m/s (Andra, 2005), in relation with the nature and fine-scale organisation of the constituting minerals, and with the physical processes that bind the minerals together and that may vary with changing environmental conditions. In this frame, it is of importance to define the magnetic mineralogy of the Callovo-Oxfordian argillites, the nature of its ferrimagnetic fraction in particular, which is responsible for the magnetic properties of the rock, including its anisotropy (Esteban et al., 2006), and which constitutes an indicator of its environmental conditions.

2. Sampling and mineralogical features

Forty-six, 6 cm-long cylinders were collected from the oblique borehole EST211 (lat: 48° 29' 06"; long: 5° 21' 25.49") that cuts across the Callovo-Oxfordian argillites in the proximity of the Andra Laboratory. In the laboratory, each core-sample has been sliced very slowly in dry conditions into 22 mm-thick disks from which around five cylinders 25 mm in-diameter have been drilled (also in dry conditions) perpendicularly to disk. This procedure helped to obtain more than 600 mini-cores, coaxial with the main core, and having the standard size for magnetic measurements.

It is worth knowing that each specimen integrates a time span in-between 500 years (Oxfordian part) and 1000 years (Callovian part) as a function of the estimated rate of sedimentary deposition (Pellenard, 2003). The clay fraction, almost entirely detrital, made of illite and smectite, represents 40% - 50% of the rock. Micritic carbonate, mainly calcite but also dolomite, makes 25% - 30% of the whole. The remaining, mostly of detrital origin and named silt fraction, constitutes 25%-30% of the rock with fine quartz grains, accessory silicates (chlorite, tourmaline) and a few biotrititic and organo-detrititic clasts (Andra, 2005; Fig. 1).

We have subdivided the whole formation into 10 lithologies numbered 1 to 10 (Fig. 1) as a function of the nature of the rock (Andra, 2005; Pellenard 2003). Lithologies 1 and 2 are made of limestone from the Dogger platform, and lithologies 9 and 10 represent the limestone of the Oxfordian platform. These lithologies bracket the Callovo-Oxfordian argillites *stricto sensu* that make lithologies 3 to 8.

3. Magnetic measurements

All measurements were performed in the LMTG (Toulouse) at the exception of hysteresis and multi-frequency susceptibility measurements that were done in Aix-Marseille (CEREGE) and of low-temperature experiments performed in the Laboratory of Chemical Coordination (LCC, Toulouse).

3.1. Magnetic susceptibility

Magnetic susceptibility represents the ability of a material to be magnetized. Its magnitude provides an indication on the total concentration of magnetic minerals, those having a paramagnetic behaviour (mostly iron-bearing silicates and pyrite) plus those having a ferrimagnetic behaviour (mostly iron-oxides, titanomagnetite principally, and ferrimagnetic iron-sulphides, greigite or monoclinic pyrrhotite principally). The volume susceptibility, k (in SI units), was measured at low-field, at the frequency of 0.93 kHz with the KLY3-bridge from Agico, and for a number of specimens, at two different frequencies (0.465 kHz and 4.65 kHz) to evaluate the presence of sub-micron size super-paramagnetic grains using the MS2B Bartington susceptometer.

3.2. Remanent magnetization and coercivity spectra

The ability of ferrimagnetic minerals to memorize a magnetization is evaluated by measuring the remanent magnetization, in A/m. Measurements were performed using the JR5A spinner magnetometer of Agico Ltd. The natural remanent magnetization (NRM) was acquired through natural processes (detrital, chemical) while the artificial remanent magnetization is acquired in the laboratory, either anhysteretically (ARM) or through a pulse of field, called isothermal (IRM). The anhysteretic remanent magnetization (ARM) was obtained by surimposing a small direct field (DC = 0.5 mT) in a smoothly decreasing alternating field (100 mT to zero) using the LDA-3 magnetizer/demagnetizer and the UM1 DC-field of Agico.

In order to analyse the internal structure of the “magnetic memory”, that depends on both the history of the rock and the nature of its ferrimagnetic minerals, the NRM and the ARM were progressively demagnetized using a tumbler demagnetizer under alternating field (AF) by steps from 5 to 100 mT. This AF demagnetization can be analysed by plotting the rate of demagnetization with respect to the applied field ($-\Delta M/\Delta H$) as a function of the applied field (H), also called natural coercivity spectra for demagnetization of the NRM, and artificial coercivity spectra (Jaep, 1969) for demagnetization of the ARM. In such plots, any peak value of $-\Delta M/\Delta H$ corresponds to a rapid decrease in magnetization which, in turn, is interpreted as due to demagnetization of a specific family of grains (and grain sizes), here called a magnetic phase. For naturally magnetized specimens (NRM), we can use the directionnal derivative of vector M (at step i) as a fonction H, using $\Delta M = |M_{i+1} - M_i|$ instead of $\Delta M = |M_{i+1}| - |M_i|$. The magnetic phases are then obtained by fitting the coercivity spectra as a sum of log-normal functions, as suggested by Kruiver (2001) and Egli (2003).

The intensity of ARM at 100 mT, also called saturation of the anhysteretic remanent magnetization (SARM), is an indicator of the concentration of the magnetic fraction that easily reach saturation (i.e. minerals of low and moderate coercivities). SARM normalized to the mass of the sample, gives the ARM susceptibility (χ_{ARM}) that in turn provides information about the grain size of this soft remanent phase when normalized to susceptibility k.

Isothermal remanent magnetization (IRM) was imparted to the rock, up to 2T in our specimens, with a pulse magnetizer (Magnetic Measurements Ltd). Using the analysis of Heslop et al. (2002), this procedure extends the coercivity spectra to high fields and provides information about the hard magnetic minerals. We used the S-ratio (Bloemendal et al., 1992) by applying a field of -0.3T after SIRM, devoted to separate the high coercive fraction from the soft one:

$$S - ratio = \frac{1}{2} \left(1 - \frac{IRM_{-0.3T}}{SIRM_{2T}} \right)$$

S-ratio equals 1 if the sample contains only low-coercive particles, and decreases when high-coercive particles appear (goethite, hematite). Normalized to k, this parameter provides information about the grain-size of the hard phase. Remanence acquired between 300 mT and 2 T, used to estimate the dust input into marine sediments (Thouveny et al., 1994; Maher and Dennis, 2001) hence used as a climatic proxy (Peck et al., 1994; Demory et al., 2005), is given by HIRM:

$$\%HIRM = [(SIRM_{2T} + IRM_{-0.3T})/SIRM_{2T}] \times 100$$

Roberts (1995) used SIRM/k as a tracer of ferrimagnetic iron-sulphide (greigite, Fe_3S_4) in a sediment poor in iron-oxides. We slightly changed this parameter into HIRM/k to avoid the effects due both to the iron-oxides and to dilution by the clay minerals, effects which are supposed to disappear beyond 300 mT. Hence, a peak value of HIRM/k should characterize the presence of greigite.

Finally, the Lowrie test consists in applying three different DC fields in perpendicular directions using the pulse magnetizer: 0-100 mT along the x-axis, 100-400 mT along y and 400-1200 mT along z, before stepwise thermal demagnetization. The magnetic remanence is measured along the three axes after each step. Slope variations of the demagnetization curves point to unblocking temperatures of specific minerals.

3.3. Hysteresis measurements

Hysteresis loops were acquired with a Vibrating Sample Magnetometer (VSM from Princeton Measurements), giving the saturation magnetization (M_s), remanent magnetization (M_{rs}) at zero field, the coercive field (H_c) or reverse field required to annul magnetization under a magnetic field, and the remanent coercive field (H_{cr}) or reverse field required to annul magnetization when the magnetic field is itself annulled. These parameters are sensitive to the nature and size of the magnetic grains. The biplot of these parameters (Day et al., 1977), under the form of M_{rs}/M_s as function of H_{cr}/H_c , defines three domains relating with the grain-size, in between a few tens of nanometers (single domains, SD) and a few tens of micrometers (multidomains, MD), through intermediate sizes (pseudo single domains, PSD). Note that grain sizes less than 30 nm cannot memorize a magnetization in absence of field, hence are called super-paramagnetic.

4. Data from magnetic susceptibility and remanence

Magnetic susceptibilities, k , range from 6 to 196 μSI for the whole collection (Fig. 2a). To the first order, such low susceptibilities call for a dominant paramagnetic behaviour carried by the iron-bearing silicates, mostly clay minerals. Variations in susceptibility depend on the ratio between the iron-bearing clay and the iron-free fractions (quartz, calcite). This is attested, in core-log studies, by the positive correlation usually observed between susceptibility, density and clay versus the calcite fraction (Pellenard, 2003). More specifically, lithology 5, which has the maximum susceptibility, is also the richest in clay. Hence, magnetic susceptibility is a first order proxy of the concentration in clay minerals.

The presence of a natural remanence, however, as evidenced by magnetizations ranging from 37 to 1470 $\mu\text{A}/\text{m}$ (Fig. 2a), attests to the presence of a ferrimagnetic contribution. This is particularly obvious for lithologies 3 and 7, rich in silt inter-layers and where the NRM increases by about 100% with respect to the clay-enriched lithologies. The biplot of k versus SARM, which is sensitive to the ferrimagnetic contributions, has the same aspect as k versus NRM (Fig. 2b) except that magnetization are two orders of magnitude higher. They confirm the presence of ferrimagnetic grains, particularly in the silt-enriched lithologies 3 and 7. It is worth noting that cyclic evolutions characterize both the clay-enriched lithologies (5 and 8) with a maximum susceptibility at about their middle part, and the silt-enriched lithologies (3 and 7) with a maximum of remanence at their middle part. No particular evolution of the magnetic parameters characterize the carbonate-enriched lithologies (1, 2, 4, 9 and 10).

5. Magnetic grain sizes

One mini-core from each cylinder was subjected to hysteresis measurements (Fig. 3c, and Table 1). The clay-enriched lithologies (5, 6 and 7) have higher magnetic saturations ($M_s \sim 450 \mu\text{Am}^2/\text{Kg}$) than the silt-enriched lithology 3 ($M_s \sim 300\text{-}400 \mu\text{Am}^2/\text{Kg}$), the transition between early to middle Oxfordian (in-between 7 and 8; $M_s \sim 100\text{-}200 \mu\text{Am}^2/\text{Kg}$) and the limestones ($M_s \sim 5\text{-}200 \mu\text{Am}^2/\text{Kg}$ in lithologies 1, 2 and 9, 10). The remanent saturations, M_{rs} , in the Callovo-Oxfordian formation (lithologies 3 to 8) follow the same evolution as M_s . These variations with lithologies imply different natures and/or sizes of minerals (Dunlop and Ozdemir, 1997). Concerning the latter property, the low M_s values of the middle Callovian and of the transition between the early and middle Oxfordian characterize large grain-sizes while the high M_s values of the clay-enriched lithologies characterize a dominance of small grain-sizes.

The ferrimagnetic contributions to susceptibility calculated from the hysteresis loops (Table 1) range from 5% (in clay-enriched lithologies 5, 6 and 7) to 10% (in silt-enriched lithologies 3 and 8). When represented in a Day diagram (Fig. 3c), the hysteresis parameters point to PS domains, i.e. having theoretical grain-sizes between $0,07 \mu\text{m}$ and $20 \mu\text{m}$ for pure magnetite, values that we may accept for the silt-enriched lithologies 3 and 7, likely richer in iron-oxides than in iron-sulphides. We note that during the deposition of lithology 3 (Fig. 3c), the representative points become closer to the MD grains (larger grain-sizes; black arrow) along with an increase of M_s and M_r . In addition, the argillites do not seem to contain very fine magnetic grain-sizes since superparamagnetic grains have not been detected, through two-frequency susceptibility measurements (Fig. 3d).

Measurement of H_c and H_{cr} during the hysteresis cycles helps to qualify the grain-size in the magnetic signal. The silt-enriched lithologies mostly have H_c and H_{cr} around 10 mT and 30 mT respectively, while the clay-enriched lithologies have respective values around 15 mT and 40 mT. We attribute these differences to an effect of grain size rather than of nature of the ferrimagnetic minerals, in accordance with an increasing grain-size of the iron-sulphides in the silt-enriched lithologies.

Grain-sizes are also characterized by the S-ratio/k for the high coercive fraction and by SARM/SIRM but for less coercive one (Fig. 4). We observe a clear difference between the Callovian, the silt-enriched part of the studied section, with high S-ratio/k and SARM/SIRM which characterize large grain-sizes, and the Oxfordian, clay-enriched part with values twofold smaller pointing to smaller grain-sizes. This character is strengthened by χ_{ARM}/k which shows the same variation between the Callovian and Oxfordian. In conclusion, the grain-size evolution (Fig. 3b) seems to increase from the base of the early Callovian, reaches a maximum at the top of the middle Callovian, then a minimum again in the early Oxfordian (490 m), the richest in clay of the whole section, the transition between the early and middle Oxfordian being marked by a drastic increase in all parameters suggesting a short supply with large grain-sizes.

6. Concentration in magnetic grains

The concentration in magnetic grains can be evaluated by k , NRM, SARM and HIRM/ k (Fig. 5). Since the clay minerals represent the dominant component, k is the most sensitive parameter with a maximum value in the Maximum Clay Zone (i.e., early Oxfordian; lithology 5), a minimum value in the carbonate-enriched lithologies and intermediate values in the silt-enriched lithologies (middle Callovien and transition between early and middle Oxfordian; lithologies 3 and 7, respectively). NRM and SARM are obviously sensitive to the ferrimagnetic minerals, particularly for soft fraction with a moderate grain-size and moderate coercive field. High values of these two parameters characterize the silt-enriched lithologies, suggesting that a large part of the iron-oxides is carried by the silt fraction, hence is detrital. The parameter HIRM/ k is more sensitive to high coercive minerals such as fine-grained magnetite, goethite, hematite and greigite/pyrrhotite. The evolution of HIRM/ k reinforces the behavior of NRM and SARM with a progressive increase during the middle Callovien, a maximum at the end of the middle Callovien and a drastic decrease in the early Oxfordian correlating with the increase in clay minerals. A specific episode appears at the early to middle Oxfordian transition, in the silt-enriched lithology 7, where HIRM/ k has particularly low values within an overall increasing trend of this parameter in the whole Callovo-Oxfordian formation.

Concentration of the most coercive component of the soft fraction, aimed at sorting sulphides from the ferrimagnetic magnetite, is characterized by $(ARM_{-50mT} - ARM_{-70mT}) / SARM$ which quantifies, after magnetization at saturation (100 mT) to which the parameter is normalized, the magnetization remaining in-between 50 and 70 mT of AF-demagnetization. This parameter represents mostly the iron-sulphide fraction and, contrary to the other parts of the formation, clearly shows its absence or low concentration in the silt-enriched lithologies (# 3 and 7) and at transitions between lithologies where the values are particularly low (Fig. 5b).

7. Identification of mineral phases

7.1 Coercivity spectra of the remanent magnetization

The lowest coercive parts of the natural and artificial spectra ($H < 5$ mT), comprising ~ 10% of total remanence, are not considered since very low coercive phases appear to have complex magnetic behaviours that cannot be ascribed to specific phases. For 5 mT $< H < 100$ mT, two main phases can be modeled in the remanence spectra (Fig. 6). Their maximum coercivities, that slightly vary from one level to the other, are mostly centered at ~15 mT for the soft component (Fig. 7a) in lithologies 1 to 6, and ~35 mT in lithology 8. With similar variations, the hard fraction is centered at ~55 mT in the Callovian and early Oxfordian (lithologies 3 to 6) and at ~75 mT at the beginning of the Middle Oxfordian (lithologies 7 to 8).

It is worth noting that the soft fraction of the NRM carries a higher magnetization than the hard one, a difference particularly marked in lithology 3 (Fig. 7b) and in the transition from lithology 7 to lithology 8. Demagnetization spectra obtained after anhysteretic magnetization (ARM) have the same soft and hard fractions, centered at the same coercivities, although much better defined since $|\Delta M / \Delta H|$ values are up to 100 times higher in the ARM spectra than for the NRM ones (Fig. 7c). However, the clay-enriched lithologies do not show coercivities higher than 30 mT suggesting that the soft and hard components have the same nature. The soft fractions carry most of the magnetization and show the same evolution than the NRM spectra (Fig. 7d). These characters suggest that the corresponding hard magnetic fraction has a relatively high

coercivity, hence a rather small grain-size, and a higher ability to magnetize than the soft fraction.

We also note that under 30 mT, the specimens have a tendency to remagnetize during demagnetization in clay-enriched lithologies, and this calls for an effect of gyroremanence attributed to greigite (Snowball, 1997; Sagnotti and Winkler, 1999) in particular in the Maximum Clay Zone.

The low interactions between magnetic minerals, likely due to their low concentration, is provided by the test of Cisowski (Fig. 8) that consists in comparing the normalized demagnetization of ARM and IRM with the corresponding acquisition curves, the intensities being normalized by SIRM and SARM, respectively. No high interaction is detected since the intersections between these curves are close 0.5, allowing us to use the method of Lowrie (1990) and Egli (2003, 2004) to analyse the natural and anhysteretic coercivity spectra (Figs. 6 & 7). Absence of haematite and goethite from our argillites is attested by the IRM acquisitions that saturate before 500 mT of DC applied field (Fig. 9). IRM acquisitions also confirm the increase of ferrimagnetic grains in lithology 3, the quasi-absence of ferrimagnetic material in the carbonate-enriched lithology 4 (specimen #15610), and the peculiar behaviour of specimen #07822 from lithology 5 which shows a first saturation at ~250 mT, attributed to the iron-sulphides, followed by a second one at ~500 mT attributed to small titano-magnetite grains. According to the software of Heslop et al. (2002), the contribution at ~250 mT (greigite/pyrrhotite?) represents 20 % of the whole in the clay-enriched lithologies.

Finally, the vector of natural remanence has been studied for several specimens. They are represented by the modified Zijderveld diagram (Fig. 14) after separation into principal components using the analysis of Kirshvink (1980). In a representation of these components into a lower hemisphere Schmidt diagram (Fig. 14) we observe that the hard component has mostly random orientations, in contrast with the orientation of the soft component which has rather constant trends and steep downward inclinations (65°-75°). The viscous component has also a tendency for subvertical inclinations. Such high inclinations for the soft component rule out a Jurassic paleopole that would give a ~45° inclination at the site. On the other hand, the high inclination values, as well as the consistently positive polarities of this soft component, agree with the present inclination, 64.5°, at the locality of the borehole, although somewhat higher by 5° to 10°. Steepening of the NRM vector may be due to decompression of the sediment, or induced by the drilling process, a phenomenon reported in magnetic studies of cored sediments (Richter, 1999). The horizontal component of the soft component allowed us to re-orientate the core-samples into the geographical reference frame (Esteban et al., 2006).

7.2. Iron-sulphide identification

With in view the identification of the magnetic iron-sulphide, we used the analysis of Peters and Thompson (1998) who plot (1) SIRM/k versus H_{cr} ; (2) SIRM/k versus $ARM_{(40mT)}/SARM$; and (3) $IRM_{(-100mT)}/SIRM$ versus $ARM_{(40mT)}/SARM$ that should help to separate the iron-sulphides from the iron-oxides (Fig. 10). These diagrams indicate that our ferrimagnetic grains are closer to (titano)-magnetites than to sulphides (Fig. 10a) and that they are fine-grained (Figs. 10 b, c), but none of them suggests that our specimen do contain magnetic iron-sulphides.

Low temperature measurements were performed for specimens coming from the three representative lithologies (Fig. 11), namely, clay-enriched (lithology 5), carbonate-enriched (lithology 4), and silt-enriched (lithology 3). Specimen # 07822, from the clay-enriched lithology clearly shows a magnetic transition around 30-35 K, attributed to pyrrhotite (Fig. 11a). Specimen #15610, from the carbonate-enriched lithology displays

nothing more than the paramagnetic behavior due to the clay minerals (Fig. 11b). Finally, specimen #15641 seems to show a faint transition at around 110 Kelvin that characterizes magnetite (Fig. 11b). We used the ratio of Moskowitz et al. (1993):

$$\partial = (M_{80K} - M_{150K}) / M_{80K},$$

where M refers to the amount of initial SIRM remaining after heating up to 80 and 150 Kelvin (i.e., on each side of the Verwey transition of magnetite). In our specimen #15641, in which traces of magnetite are suspected, ∂_{FC} (cooled under applied field) is close to ∂_{ZFC} (cooled under Earth field), strongly suggesting that our magnetite MD is perhaps of detrital origin ? Suspecting that interactions due to coexisting ferrimagnetic mineral phases do influence the ∂ signal, we used the Oldfield (1994) approach which compares χ_{ARM}/χ_{FD} with χ_{ARM}/k where χ_{FD} is the frequency dependence of the magnetic susceptibility (obtained as k at low-field minus k at high-field). Although falling aside the fields defined by Oldfield, our data tend to confirm the detrital origin of our Jurassic magnetites (Fig.12).

In our attempt to further document the ferrimagnetic fraction, one specimen from each representative lithology, but the transitional ones (#1 and 4), was subjected to a test of Lowrie (1990) (Fig. 13). Presence of magnetite is supported by the fact that all curves tend to zero between 500°C and 600°C, the small grain-size of the ferrimagnetic phase is supported by the absence of slope variation of the low- and moderate-coercivity curves. Presence of unblocking temperatures around 400°C would call for iron-oxides such as titano-maghemite or titano-magnetite, in particular in lithologies 3 and 8, but phase transformations may occur by heating above 350°C (Fig. 13). By contrast, unblocking temperatures around 200°C call for greigite (Fe_3S_4) according to Torii et al. (1996), while those around 300°C (Sagnotti and Winkler, 1999) would indicate iron-enriched sulphides (pyrrhotite) in particular in lithologies 3, 5 and 8.

8. SEM images

Scanning electron microscopy (JEOL, JSM-6360LV), operated at 15 kV with an EDS system (LMTG, Toulouse), helped to observe two categories of possible magnetic objects in specimens from lithologies 3 and 5 (Fig. 15). The most common objects are clusters, or framboids, of iron-sulphide grains of various arrangements, shapes and sizes (Figs. 15a-e), obviously resulting from "pyritization" of biogenic constructions, homogeneously distributed in the sediment easily evidenced in back-scattered contrast. Figure 15a represents a group of a few microns wide spherical framboids (replacing pellets ?), each one being composed by thousands of grains of iron-sulphide (Fig. 15b). These framboids also form frequent elongate worm-like features (Fig. 15c). The individual size of these iron-sulphide grains vary from a fraction of a micron to a few microns (Fig. 15d). Their association with residual organic matter, such as carbon-rich objects, and the mimetism of biogenic shapes, indicate a fossilization process under anoxic conditions for the origin of the framboids. This unambiguously calls for an early diagenetic nature of the iron-sulphides. Less frequent angular grains of (Fe+Ti+O), a few tens of microns large, have also been observed, which apparently are detrital titano-magnetite grains (Fig. 15e). In addition, at the base of lithology 3, a trellis of (Ti+O)-rich objects is as observed (Fig. 15f) and interpreted as a set of Ti-rich exsolutions (ilmenite) in an otherwise leached titanomagnetite or titanomaghemite grain (Fig. 15f).

9. Discussion

The very weak concentration of magnetic minerals makes difficult their identification, and each individual observation is hardly decisive in this purpose. However, we propose that the soft fraction corresponds to the observed iron-sulphides while the hard fraction corresponds to grains of Ti-Fe oxides. Pyrite (FeS_2), which is considered to make up the iron-sulphide framboids, results from the production of hydrogen sulphide, via bacterial reduction of sulfate in anoxic bottom waters and porewaters. However, the paramagnetic nature of pyrite yields no signal of remanence. By contrast, greigite (Fe_3S_4), as well pyrrhotite (Fe_7S_8), are ferrimagnetic.

Among the numerous studies that have examined the genesis of pyrite framboids, many of them invoke the following chemical reactions (Shoonen and Barnes, 1991): mackinawite (FeS), ordered mackinawite (Fe_9S_8), greigite (Fe_3S_4), pyrite (FeS_2). Wilkin and Barnes (1997) even suggest that the magnetic accretion of microcrystals of greigite is at the origin of the framboids. On the other hand, Jiang et al. (2001), who studied greigite related to framboids conclude that, although diagenetic, greigite may postdate pyrite, forming still finer-grained aggregates. Whatever the very mechanism of formation, it is likely that the framboids do contain greigite or a neighbouring “intermediate” ferrimagnetic sulphide. This phase was not coercive enough to memorize the paleomagnetic pole of formation, but coercive enough to memorize the present north, or the averaged north since the last reversal.

The hard fraction that we have evidenced in the coercivity spectra and IRM experiments is logically attributed to (titano)-magnetite or -maghemite, the ill-crystallized form of magnetite. Such grains (Fig. 15e), or relicts of such grains (Fig. 15f), though much less frequent than the framboids, are currently observed under the electron microscope. Attribution of the hard-coercive fraction (Fig. 7) to iron-sulphides respects the observed inversion in magnetization magnitudes between the NRM and ARM specimens, since the intrinsic magnetization of iron-oxides is two to three times higher than for iron-sulphides (Dunlop and Özdemir, 1997). Finally, the detrital nature of the iron oxides, that in turn carry their own remanent vectors, agrees with the observed weak NRM of this fraction in the sediment.

Other magnetic phases in subordinate proportions, may however be present, such as a probably ill-crystallized, slightly remanent phase that makes the viscous fraction. Variable grain-size distributions from specimen to specimen may justify the observed variations in peak coercivity of the hard fractions. Grain-size refinement of the iron oxides, hence becoming more coercive, may result from dissolution by sulphide-bearing solutions that, in turn, result from interaction between clay and organic matter.

10. Conclusion

The magnetic phases are good markers of the redox conditions that prevailed in the sediment during the slight diagenesis of our Jurassic argillites. Both iron-sulphides and iron-oxides are shown to be present together in the sediment, their coexistence being due to different origins rather than to different redox conditions at different times. From a palaeoclimatic point of view, the Callovian corresponds to a warming environment allowing a higher supply of detrital particles with a coeval increase in grain-sizes. The maximum of remanence in the middle of lithology 3 corresponds to the maximum flooding of the Callovian, hence to the maximum supply of detrital material. A similar behaviour is observed in the Maximum Clay Zone that corresponds to the maximum flooding event of the whole formation, in a cooler environment. This clay-rich level is favorable to the formation of iron-sulphides, such as pyrite principally which, however, seems to be systematically accompanied by ferrimagnetic iron-sulphides. The Oxfordian corresponds to a warming period in a dry and still less oxic environment before, and again favorable to the development of iron-sulphides. A short duration supply of coarser-grained iron-oxides at the transition between the early and middle Oxfordian is coeval with a short maximum flooding.

In conclusion, climatic conditions and eustatic marine levels explain the size, concentration and nature of the magnetic minerals, high marine levels supplying systematically higher concentrations and larger grain-sizes of magnetic minerals. Preservation of these minerals is attributed to the very low hydraulic conductivities that prevailed after compaction, giving an hydraulic conductivity of about 10^{-14} m/s, corresponding to fluid transport on the order of a few hundreds of meters for the whole life-time of the sediment.

Acknowledgements

This work has been realized in the frame of the CNRS-FORPRO Research Group (publication # 2004/10A). Andra is kindly acknowledged for providing the studentship of Lionel Esteban. Thierry Aigouy (LMTG) is warmly thanked for his disponibility in SEM imaging. We also thank Pierre Rochette (CEREGE, Marseille) for acquisition of the hysteresis data, and Alain Marie (LCC, Toulouse) who provided us with the low-temperature magnetic measurements with the SQUID apparatus.

Figure captions

Figure 1. Location of the Andra Laboratory and of borehole EST211 under study, with geological description (stratigraphy, lithology, mineralogy and subdivision used in text).

Figure 2. Magnetic susceptibility (μSI) versus remanence ($\mu\text{A/m}$) for all the studied specimens from EST211. a) natural remanence (NRM); b) anhysteretic remanence; c) within-lithology evolution (arrows) of the NRM.

Figure 3. Ferrimagnetic properties deduced from the hysteresis loops and bi-frequency susceptibilities, using one specimen from each core-sample along the borehole. a) Evolution of H_{cr} and M_s ; b) evolution of H_c and M_{rs} ; c) Day plot, used for grain-size discrimination; d) high-frequency susceptibility versus low-frequency susceptibility used to reveal eventual superparamagnetic grains.

Figure 4. Along borehole evolution of the magnetic grain-size parameters (S-ratio/k; χ_{ARM}/k ; SARM/SIRM). Depth defined from the surface, and lithologic and stratigraphic limits given.

Figure 5. Along borehole evolution of magnetic parameters aimed at characterizing the concentration and nature of the magnetic minerals. Depth defined from the surface, and lithologic and stratigraphic limits given.

Figure 6. Natural (a) and artificial (b) coercivity spectra simulated using best-fit gaussians, coming from the same specimen (lithology 5 from EST211 borehole). Families of coercivities, whose evolution is presented in figure 7, are defined by the peak values of their representative gaussians.

Figure 7. Along borehole evolution of the coercivity spectra; depth defined from the surface, and lithologic and stratigraphic limits given. a) and c) position of each population (in mT) defined from the natural and artificial coercivity spectra, respectively. b) and d) corresponding intensities (in A/m), from natural and artificial coercivity spectra, respectively.

Figure 8. Cisowski tests from representative lithologies of borehole EST211, devoted to characterise interactions between magnetic grains. Specimen 07822 from the clay-enriched lithology 5; specimen 15610-B1 from the carbonate-enriched lithology 4; 15665-B3 and 15641-A3, respectively, from the base and top of the silt-enriched lithology 3. See text for details.

Figure 9. Plot of the isothermal remanent magnetization (IRM, in A/m) versus the applied field (mT) for specimens coming from different lithologies.

Figure 10. Peters and Thompson's (1998) magnetic biplots. a) SIRM/k (in kA/m) versus H_{cr} (in mT) devoted to separate iron-oxides from iron-sulphides; b) SIRM/k versus ARM(-40mT)/SARM devoted to isolate the contribution of pyrrhotite; c) IRM(-300mT)/SIRM versus ARM(-40mT)/SARM devoted to isolate the contribution of greigite.

Figure 11: Remanence (in emu) versus temperature (in Kelvin) curves (zero field cooled and field cooled) for representative specimens from borehole EST211. a) for a clay-enriched specimens (#07822; lithology 5); b) for a carbonate-enriched specimen (#15610; lithology 4), and a silt-enriched specimen (#15641; lithology 3).

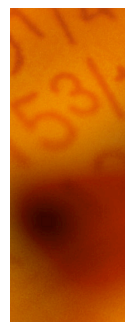
Figure 12: Oldfield's (1994) discrimination of detrital magnetite (A) from biogenic magnetite (B), by plotting χ_{ARM}/χ_{FD} as a function of χ_{ARM}/k . This approach is applied to specimens from all lithologies coming from borehole EST211.

Figure 13. Lowrie test of a sample from each lithology (but 1 and 4) from borehole EST211, obtained by thermal demagnetization along three pre-magnetized perpendicular axes: 0.1T parallel to X (dotted line), 0.4T along Y (dashed line) and 1.2T along the Z axis (bold line).

Figure 14. Modified Zijdeveld representation of the viscous, soft and hard components for specimens coming from the top part of the Callovo-Oxfordian formation, and Schmidt orientation diagrams of these components in the reference frame of the core-sample. R: core fiducial line used as a reference (16 specimens from lithology 8).

Figure 15. Scanning electron microscopy images from the top (lithology 9; c, d and e) and base (lithology 3; a, b and f) of the formation. (a) Set of spherical framboid aggregates of iron-sulphides (b) Enlargement of (a) showing the individual octaedral micro-grains coated with an undetermined mineral species. (c) Pyritization of a worm-like feature. (d) Enlargement of (c) showing the various grain-sizes. (e) Titano-magnetite detrital grain wrapped by foils of clay minerals. (f) Treillis of Ti-O exsolutions in a leached titano-magnetite grain.

Table: Magnetic parameters from Bartington and hysteresis measurements in each lithologies. χ_{LF} and χ_{HF} represent the susceptibility at low and high frequency respectively measured with a Bartington at the CEREGE laboratory. Saturation of magnetization (Ms), saturation of the remanent magnetisazation (Mrs), coercivity field (Hc) and remanent coercivity field (Hcr) come from VSM hysteresis measurements at the CEREGE laboratory. Mrs/Ms and Hcr/Hc ratios are used for grain size distribution on a Day diagram.



Andra, collectif (2005). Dossier 2005 Argile – Référentiel du site de Meuse / Haute-Marne – cinq documents – Andra éd. Déc. 2005. Tome 1 – Volume 1.

Aytougoudal, M., Boiron, M.C. & Cathelineau, M., 1996. Paléothermicité des calcaires de l'Est de la France: forage de la Haute Marne (Cirfontaine-en-Ornois). Rapp. ANDRA, BRP oCRE 96-005, 48 pp.

Day, R., Fuller, M.D. & Schmidt, V.A., 1977. Interacting single domain properties of magnetite intergrowth. *J. Geophys. Res.*, 81: 989-994.

Dunlop, D.J., 2002. Theory and application of the Day plot (Mrs/Ms versus Hcr/Hc). 2. Application to data for rocks, sediments and soils. *J. Geophys. Res.*, vol. 107, n°B3, 10.1029/2001JB000487.

Dunlop, D.J. & Özdemir, Ö, 1997. Rock magnetism: fundamentals and frontiers, Cambridge Univ. Press, 573 pp.

Egli, R. (2003). Analysis of the field dependence of remanent magnetization curves. *J. Geophys. Res.*, 102, 10.1029/2002JB002023.

Gaucher, E., Robelin, C., Matray, J.M., Négrel, G., Gros, Y., Heitz, J.F., Vinsot, A., Rebours, H., Cassagnabère, A. & Bouchet, A., 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, 55-77.

Heslop, D., Dekkers, M.J., Kruiver, P.P. and van Oorschot, I.H.M. (2002). Analysis of isothermal remanent magnetization acquisition curves using the expectation-maximization algorithm. *Geophys. J. Int.*, 148, 58-64.

Jaep, W.F. (1969). Anhyseretic magnetization of an assembly of single-domain particles. *J. Appl. Phys.*, 40, 1297-1298.

Jiang, W.T., Horng, C.S., Roberts, A.P. & Peacor, D.R., 2001. Contradictory magnetic polarities in sediments and variable timing of neof ormation of authigenic greigite. *Earth Planetary Science Letters*, 193, 1-12.

Kirshvink, J.L., 1980. The least squares line and plane and the analysis of paleomagnetic data. *Geophys. J.R. Astron. Soc.*, 62, 699-718.

Kruiver, P.P., Dekkers, M.J. & Heslop, D., (2001). Quantification of magnetic coercivity components by the analysis of acquisition curves of isothermal remanent magnetization. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 189, 269-276.

Landais, P. and Elie, M., 1999. Utilisation de la géochimie organique pour la détermination du paléoenvironnement et de la paléothermicité dans le Callovo-Oxfordien du site de l'Est de la France. Actes des Journées Scientifiques CNRS/ANDRA, EDP Sciences Ed., Paris.

Lemoine, M. et de Gracianski, P.C. (1988). Marge continentale thétysienne dans les Alpes. *Bull. Soc. géol. France*, 8, IV/4, 598-697.

- Lowrie, W., 1990. Identification of ferromagnetic minerals in a rock by coercivity and unblocking temperature properties. *Geophys. Res. Lett.*, 17/2, 159-162.
- Oldfield, F. (1994). Toward the discrimination of fine grained ferrimagnets by magnetic measurements in lake and near-shore marine sediments. *J. Geophys. Res.*, 99, 9045-9050.
- Palfy, J., Smith, P.L. & Mortensen, J.K., 2000. A U-Pb and $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ time scale for the Jurassic. *Can. J. Earth Sci.*, 37, 923-944.
- Pellenard, P., 2003. Message terrigène et influences volcaniques au Callovo-Oxfordien dans les bassins de Paris et du Sud-Est de la France. Société géologique du Nord, Lille, n° 31, 362 pp.
- Pellenard, P., Deconinck, J.F., Marchand, D., Thierry, J., Fortwengler, D. & Vigneron, G., 1999. Contrôle géodynamique de la sédimentation argileuse du Callovien-Oxfordien moyen dans l'Est du bassin de Paris: influence eustatique et volcanique. *C. R. Acad. Sci. Paris*, 328, 807-813.
- Roberts, A.P. (1995). Magnetic properties of sedimentary greigite (Fe_3S_4). *Earth Planet. Sci. Lett.*, 134, 227-236.
- Richter, C., Hayashida, A., Guyodo, Y., Valet, J.P. & Verosub K.L., 1999. Magnetic intensity loss and core diagenesis in long-core samples from the East Basin and the San Nicolas Basin (California Borderland). *Earth Planets Space*, Vol. 51, 329-336.
- Sagnotti and Winkler, 1999. Rock magnetism and paleomagnetism of greigite-bearing mudstones in the Italian peninsula. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 165, 67-80.
- Shoonen, M.A.A. & Barnes, H.L., 1991. Reactions forming pyrite and marcasite: via FeS precursors below 100°C . *Geochim. Cosmochim. Acta*, 55, 1505-1514.
- Snowball, I.F., 1997. Gyroremanent magnetization and the magnetic properties of greigite-bearing clays in southern Sweden. *Geophys. J. Int.*, 129, 624-636.
- Thouveny, N., de Beaulieu, J.-L., Bonifay, E., Creer, K. M., Guiot, J., Icole, M., Johnsen, S., Jouzel, J., Reille, M., Williams, T. and Williamson, D. (1994). Climate variation in Europe over the past 140 kyr deduced from rock magnetism. *Nature*, 371, 503-506.
- Torii, M., Fukuma, K., Horng, C.S. & Lee, T.Q., (1996). Magnetic discrimination of pyrrhotite- and greigite-bearing sediment samples. *J. Geophys. Res.*, 23/14, 1813-1816.
- Wilkin, R.T. & Barnes, H.L., 1997. Formation processes of framboidal pyrite. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 61, 323-339.

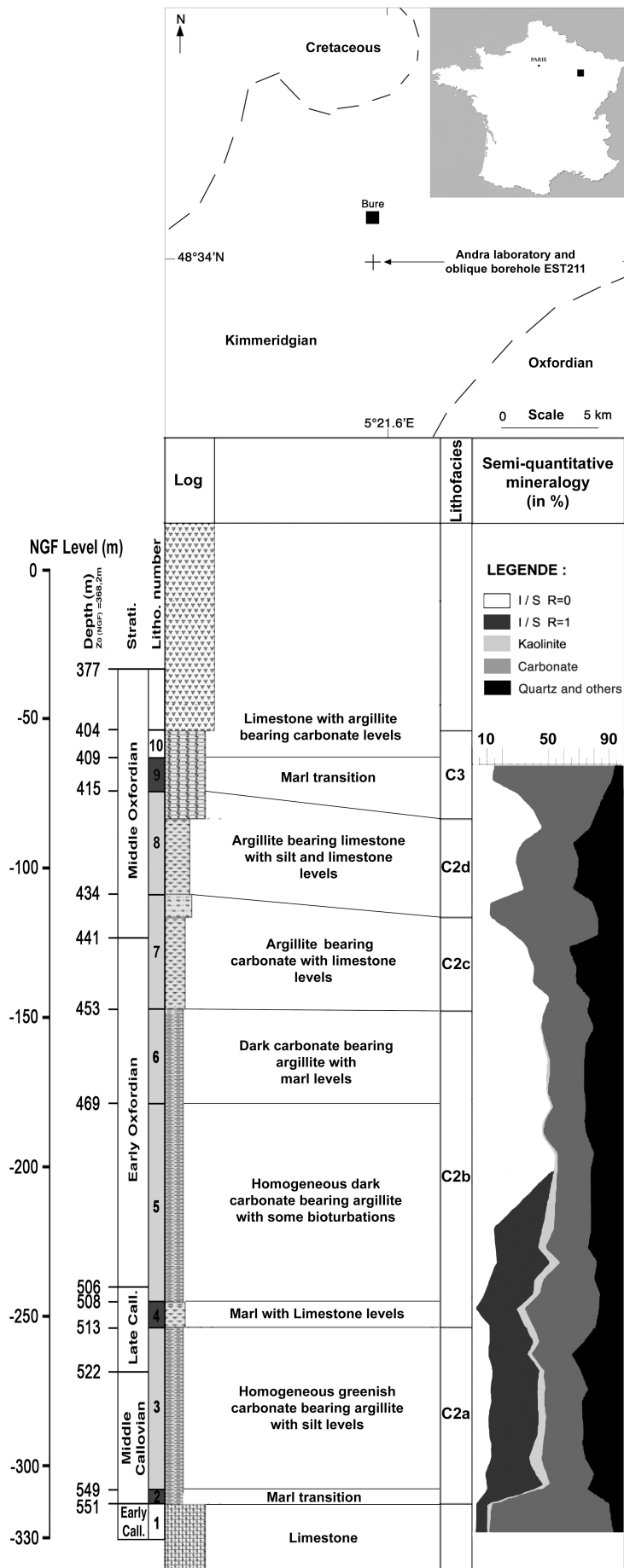


Figure 1

4 – Apports du magnétisme dans les argilites

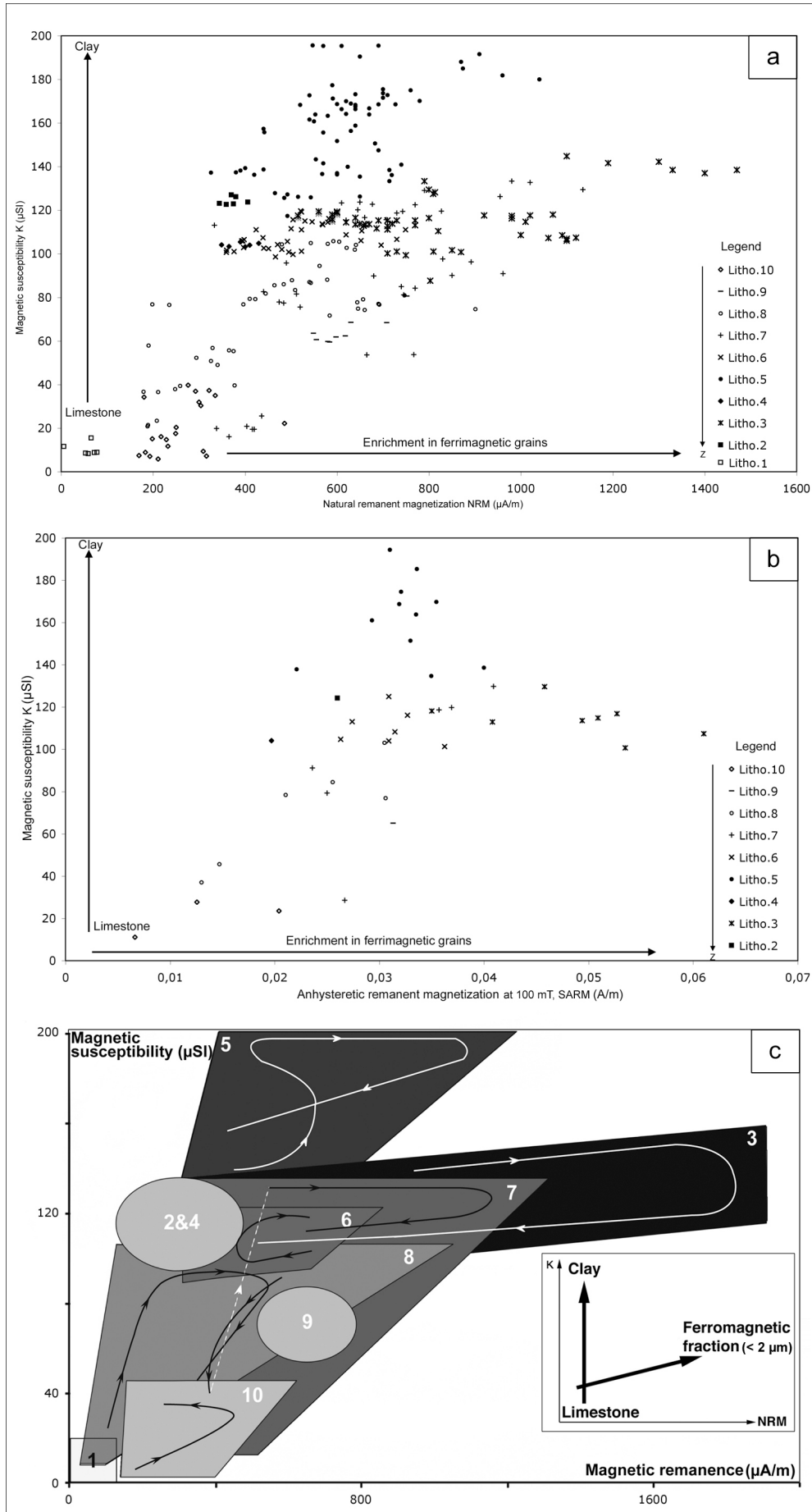


Figure 2

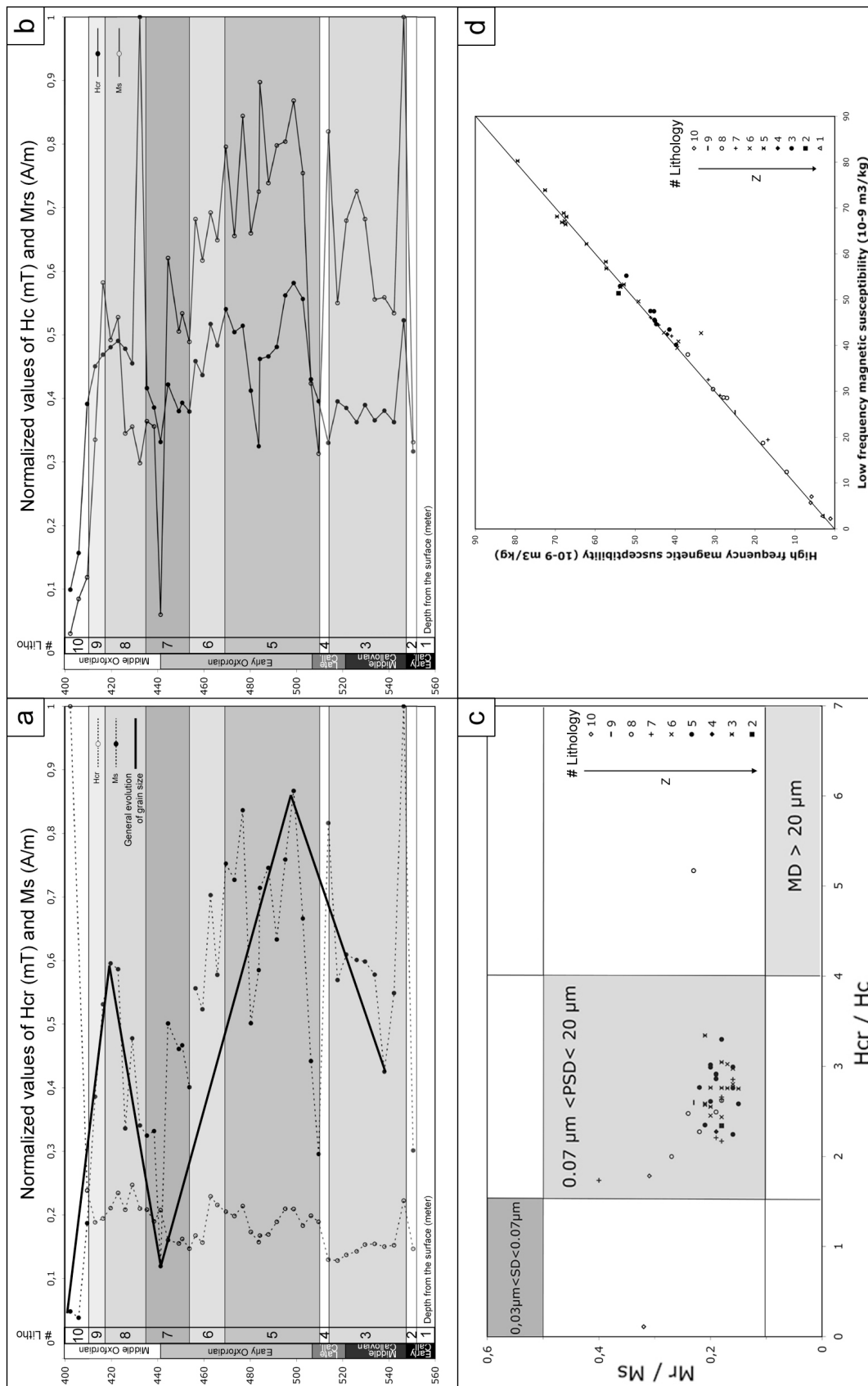


Figure 3

4 – Apports du magnétisme dans les argilites

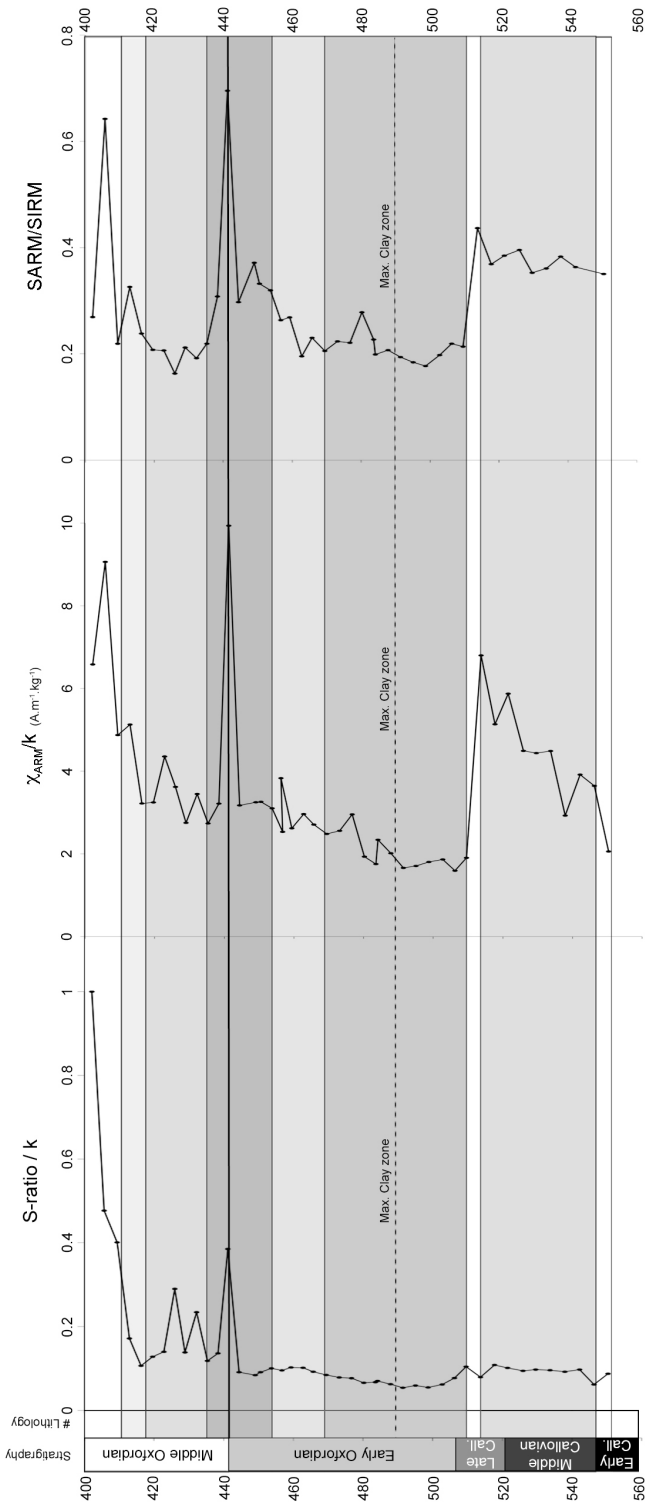


Figure 4

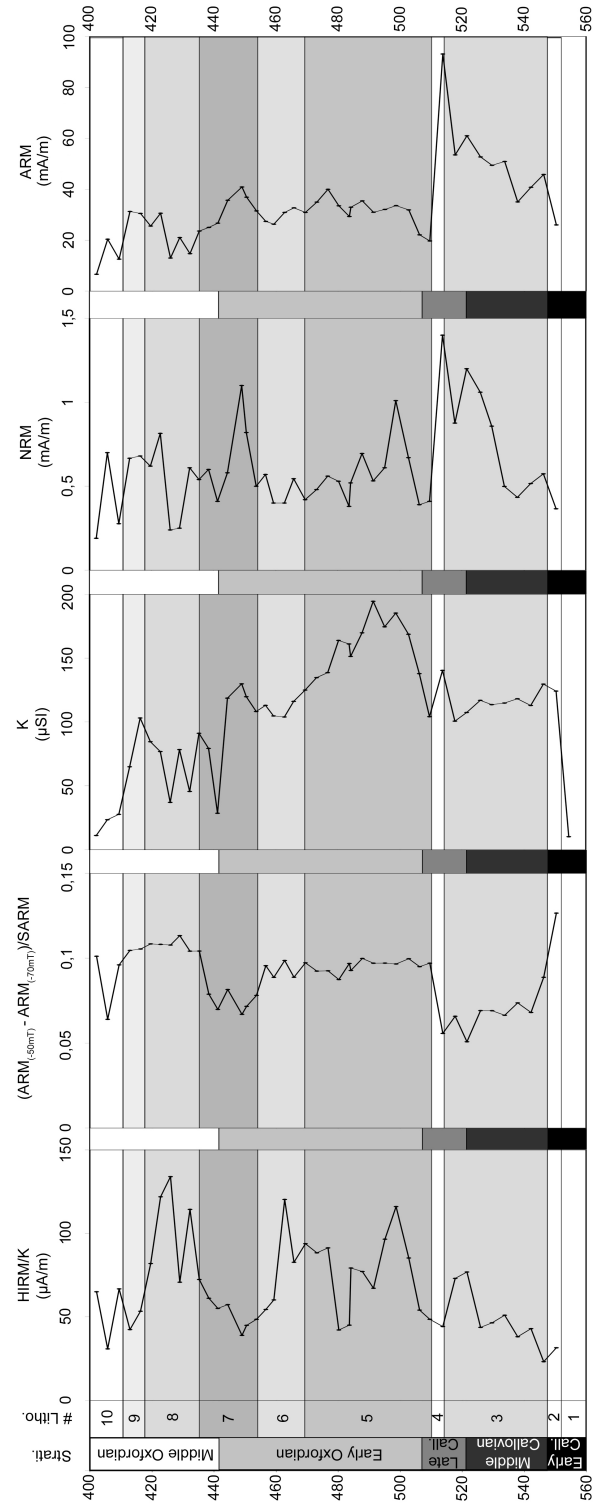


Figure 5

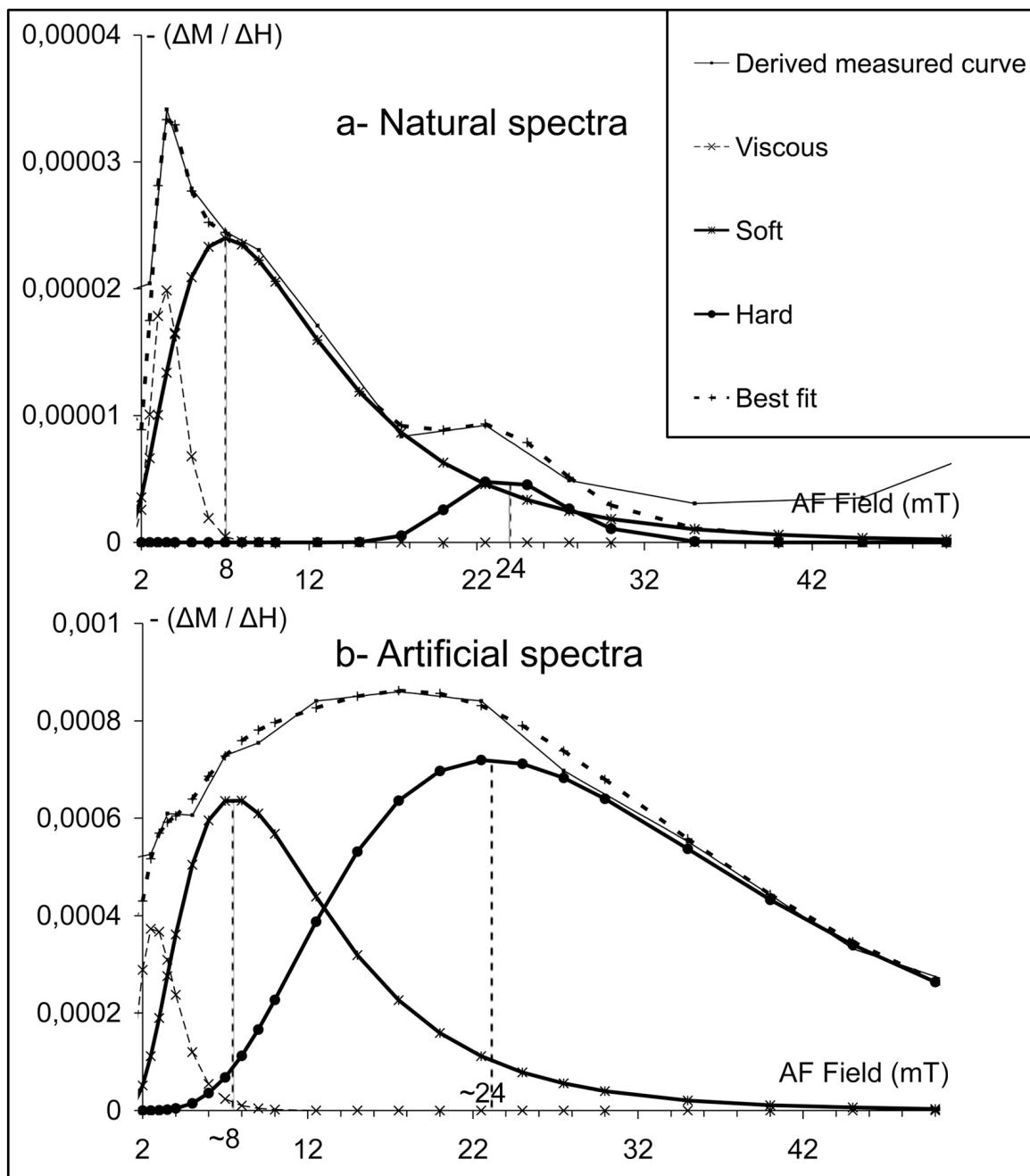


Figure 6

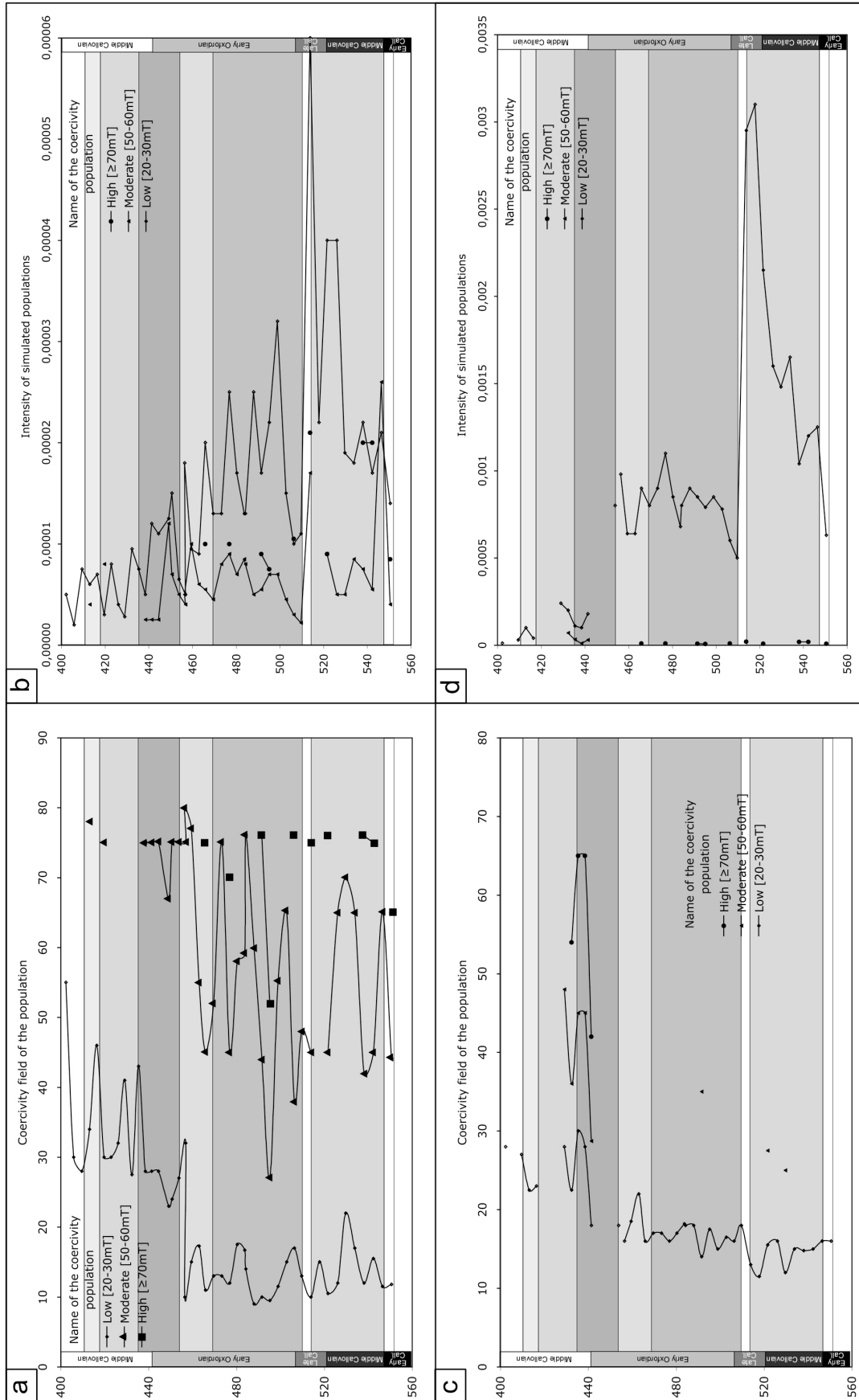


Figure 7

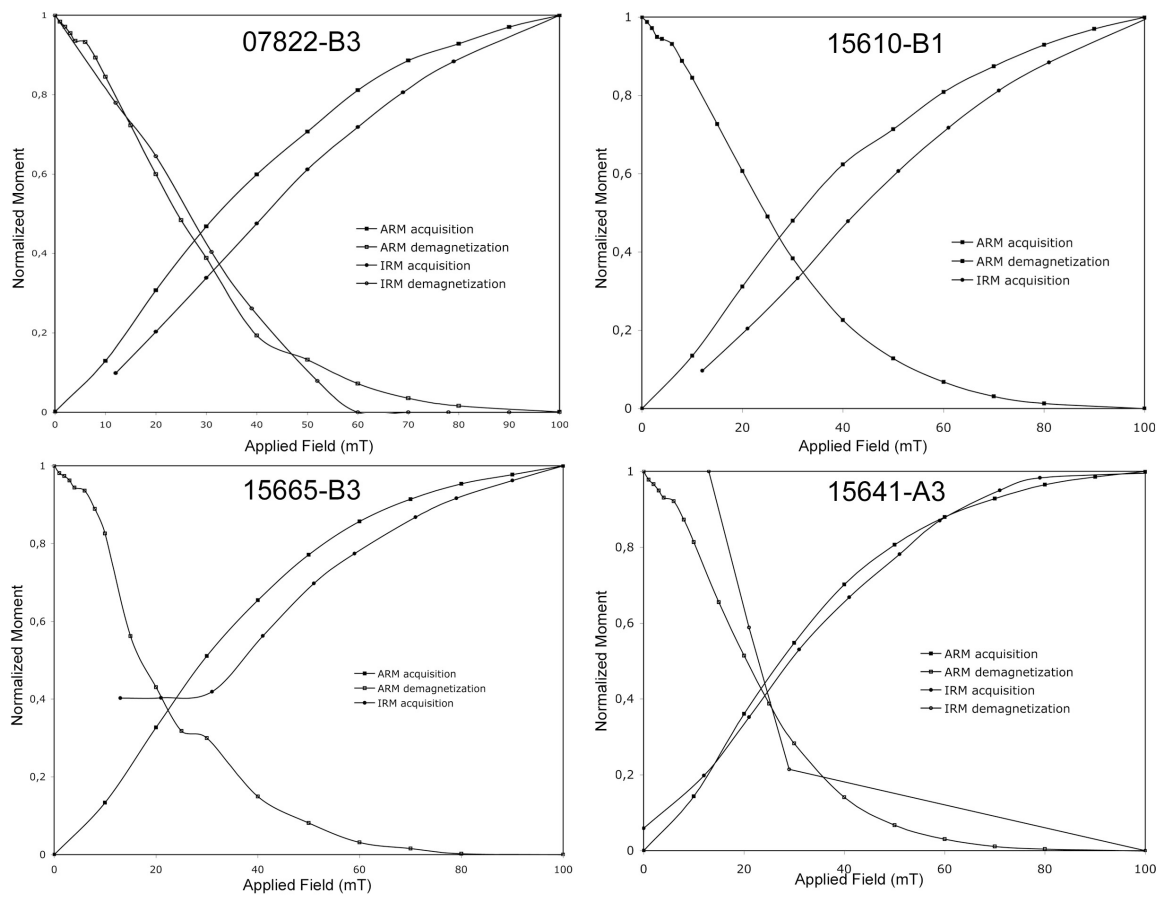


Figure 8

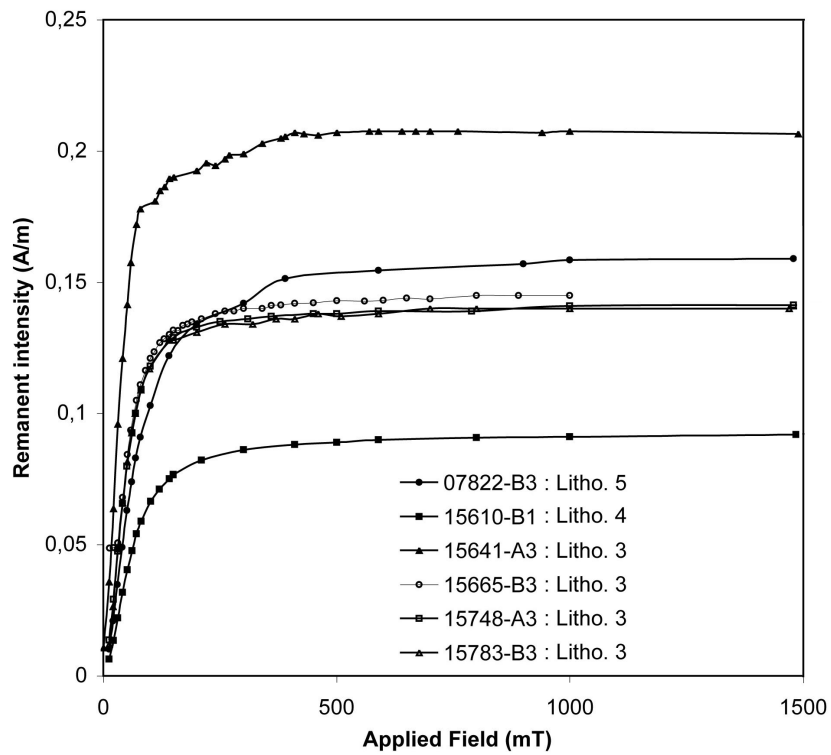


Figure 9

4 – Apports du magnétisme dans les argilites

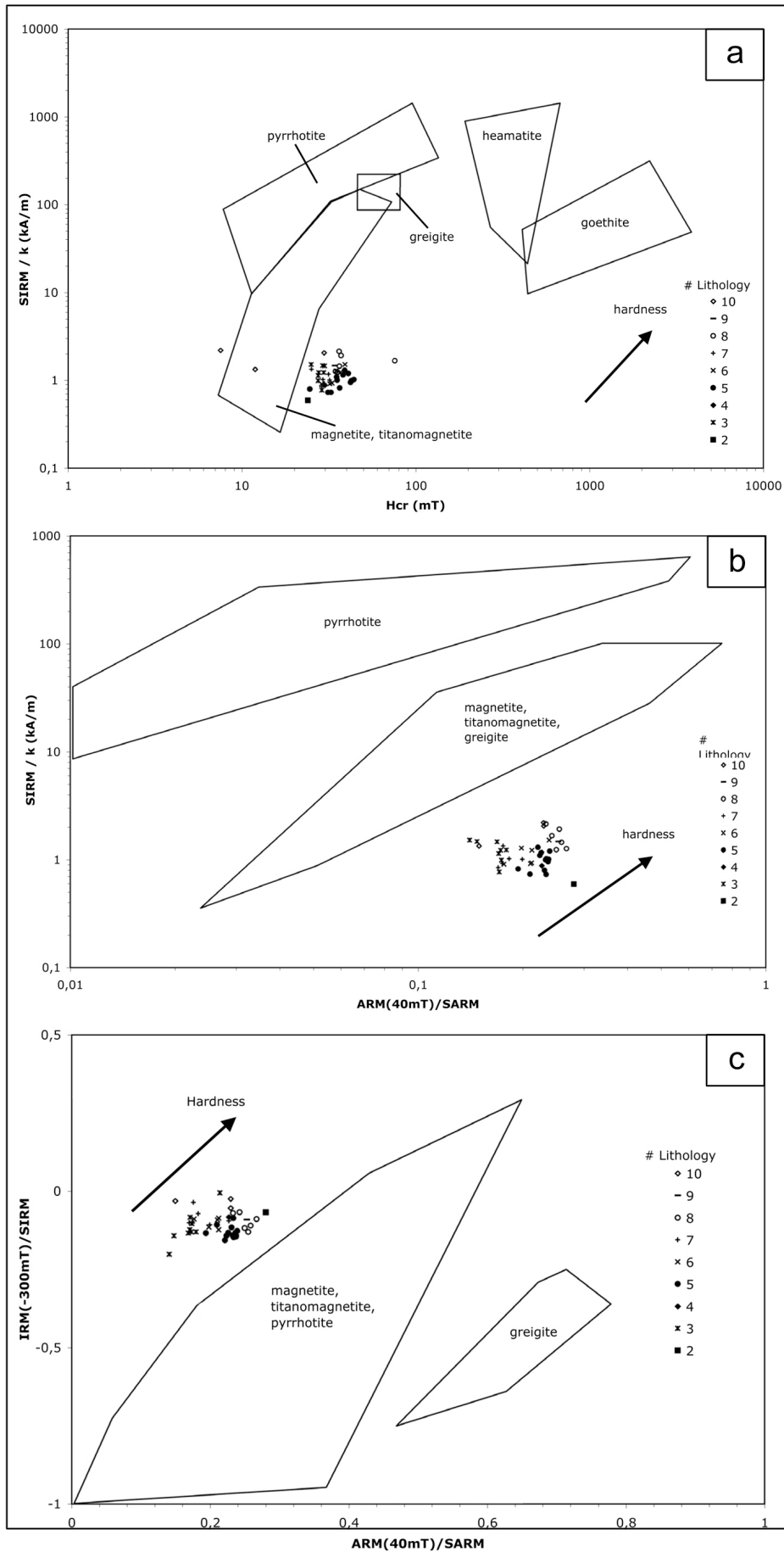


Figure 10

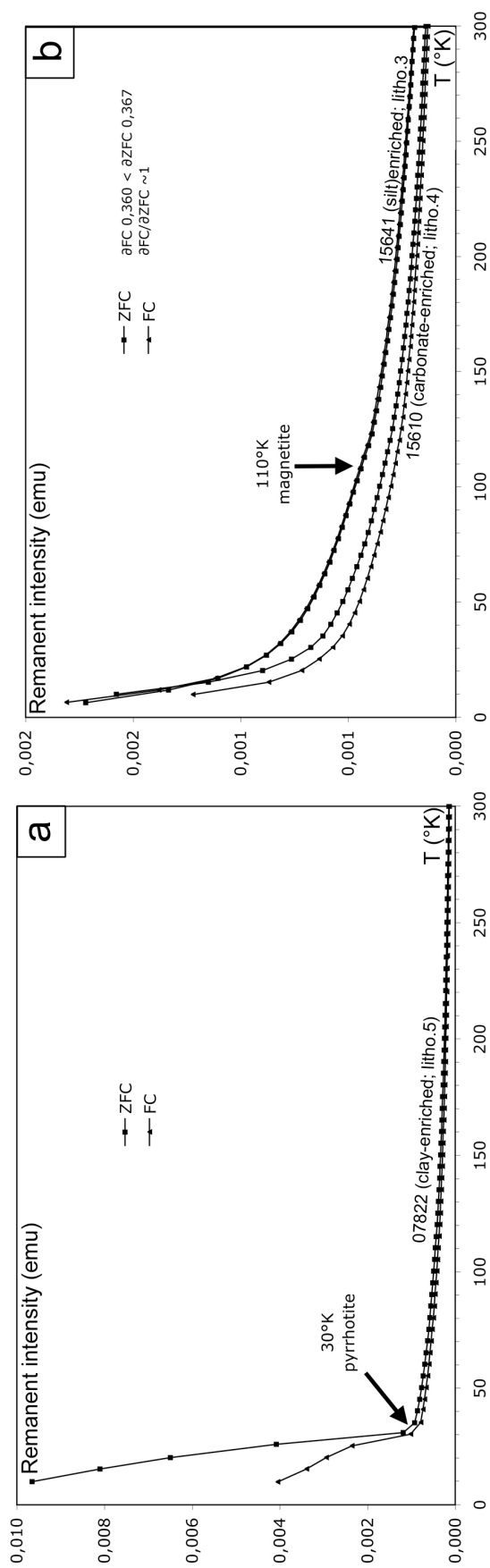


Figure 11

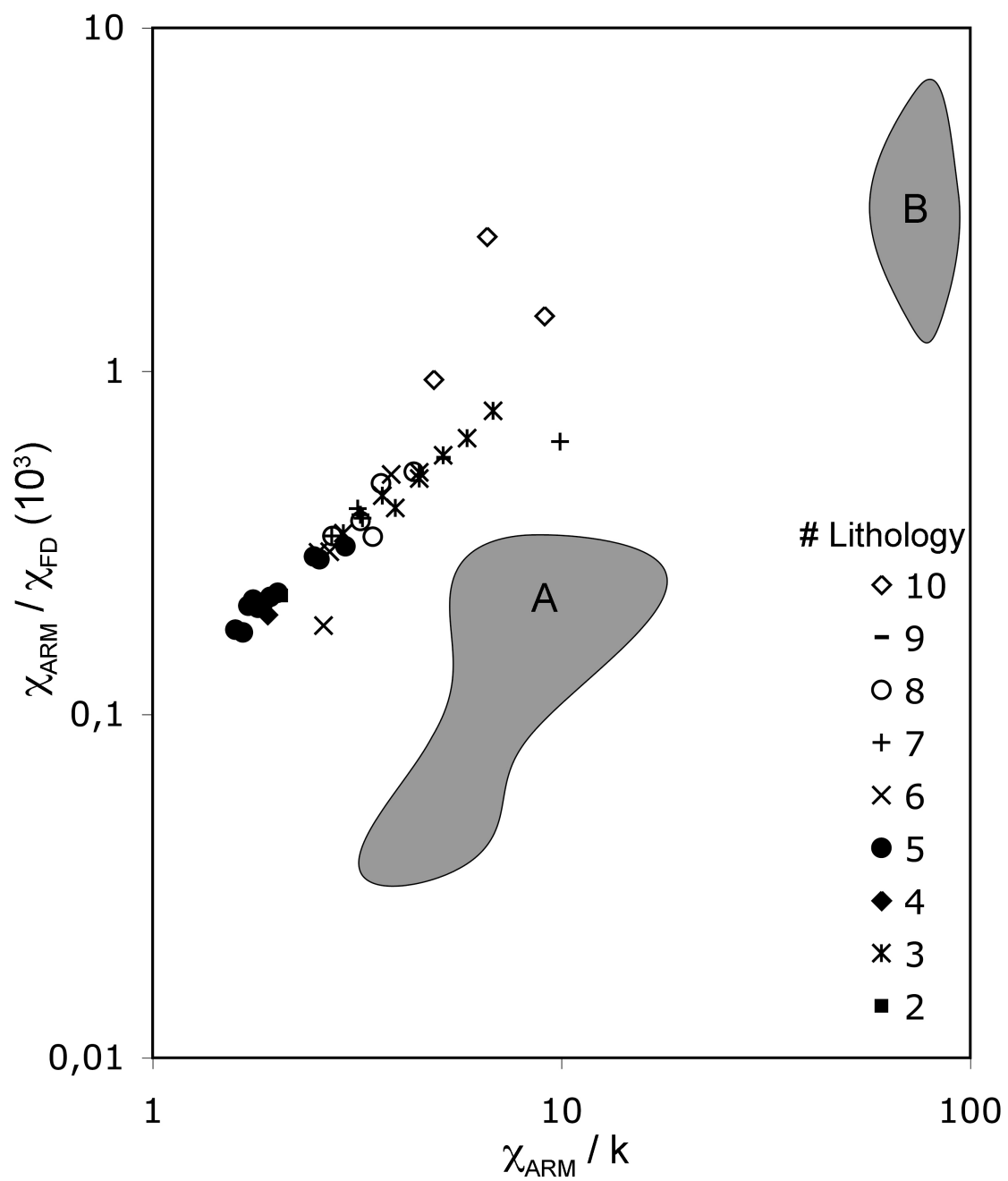


Figure 12

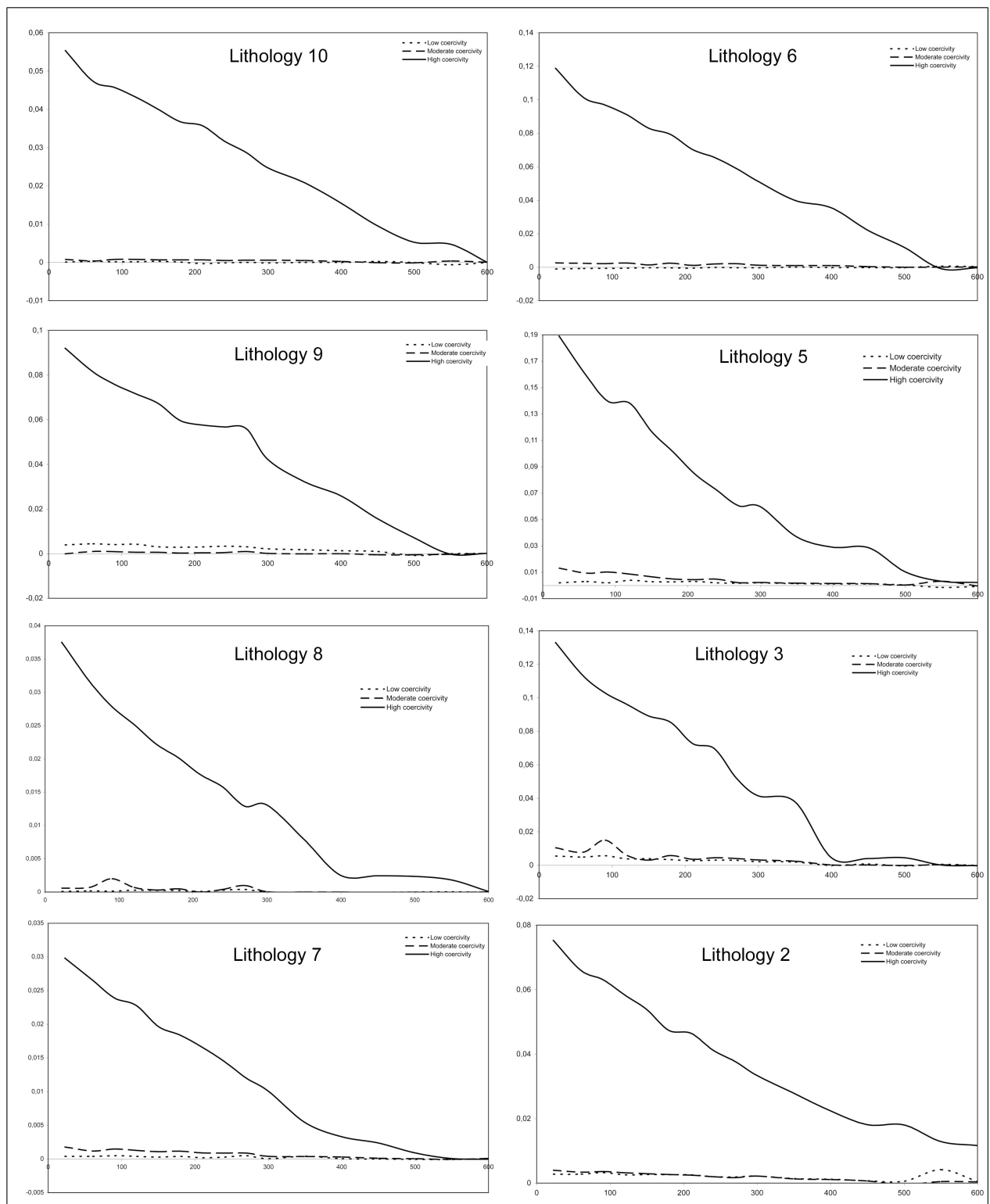


Figure 13

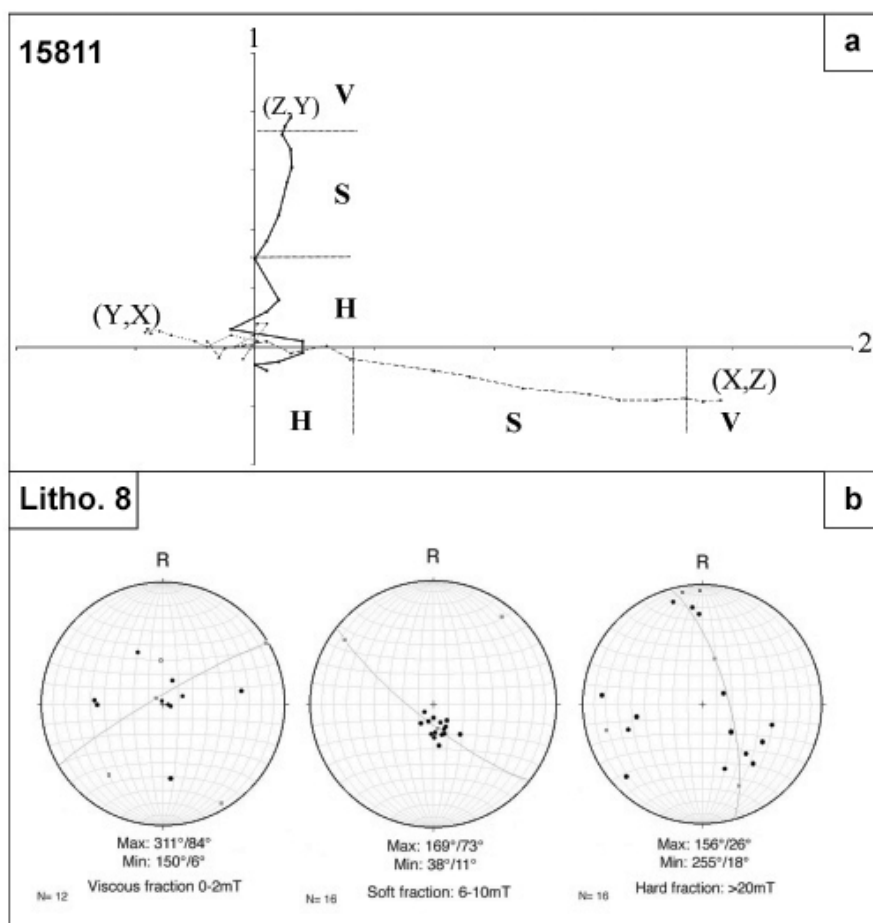


Figure 14

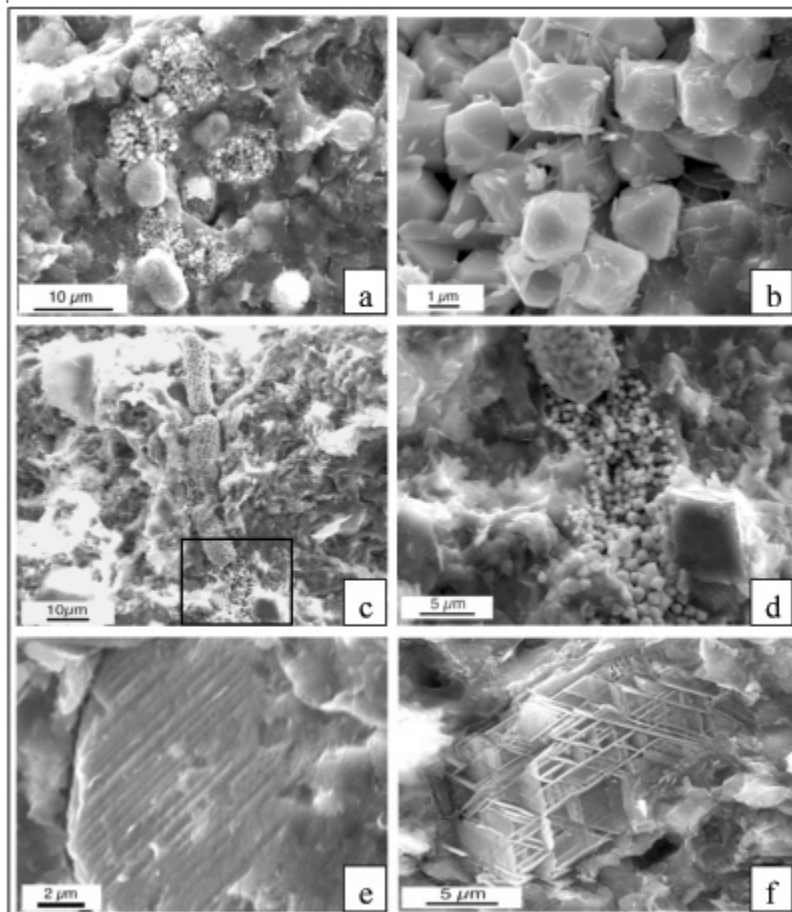


Figure 15

# Litho.	#Sample	Depth (m)	χ_{LF} ($10^{-9} \text{ m}^3 \text{ kg}^{-1}$)	χ_{HF} ($10^{-9} \text{ m}^3 \text{ kg}^{-1}$)	Hc (mT)	Hcr (mT)	Mr ($\mu\text{Am}^2 \text{ Kg}^{-1}$)	Ms ($\mu\text{Am}^2 \text{ Kg}^{-1}$)	Mr/Ms	Hcr/Hc	
10	11802	402,2	2,2	1,1	69,5	7,5	5,7	18,1	0,32	0,11	
	11804	405,8	5,7	6,1	?	11,9	4,6	50,3	0,09	?	
	11807	409,5	7,0	5,8	16,6	29,6	22,2	70,6	0,31	1,78	
9	11809	413,0	25,4	24,9	13,1	34,1	45,8	198,7	0,23	2,60	
8	11811	416,4	38,0	36,8	13,5	35,4	63,1	345,3	0,18	2,62	
	11813	419,7	30,5	30,5	14,7	36,3	70,7	291,8	0,24	2,48	
	11815	422,9	28,6	27,0	16,3	37,1	69,6	312,9	0,22	2,27	
	11817	426,0	12,4	12,1	14,5	36,1	39,9	204,7	0,19	2,49	
	11820	429,0	28,7	27,8	17,2	34,4	56,7	211,0	0,27	2,00	
	11821	432,3	18,7	18,0	14,6	75,6	40,5	177,0	0,23	5,17	
7	11824	435,4	32,5	31,7	14,5	31,4	38,6	216,0	0,18	2,17	
	11827	438,5	29,1	28,7	13,2	29,2	39,4	211,1	0,19	2,21	
	11828	441,3	19,4	16,7	14,5	25,1	14,2	35,6	0,40	1,73	
	11830	444,4	42,1	40,9	11,2	31,9	59,5	368,2	0,16	2,85	
	11832	449,1	46,1	46,1	10,8	28,7	54,8	299,8	0,18	2,66	
	11834	450,6	44,5	44,1	11,3	29,7	55,4	316,5	0,18	2,63	
6	11837	453,8	39,5	39,5	10,2	28,7	47,6	290,1	0,16	2,80	
	11839	453,9	40,9	39,2	11,1	32,0	52,6	278,4	0,19	2,88	
	15286	456,4	42,7	33,5	11,7	34,7	66,0	404,4	0,16	2,97	
	15309	459,4	67,1	67,6	10,9	33,0	62,2	365,8	0,17	3,02	
	15319	462,9	42,8	42,8	15,9	39,1	83,4	410,5	0,20	2,45	
	15348	465,8	49,6	49,2	15,0	36,5	68,6	384,6	0,18	2,44	
5	15371	469,5	53,3	52,8	14,3	40,9	89,3	471,9	0,19	2,86	
	15378	473,2	58,3	57,3	13,8	38,1	86,3	388,6	0,22	2,76	
	15419	476,8	56,8	57,2	14,9	38,9	99,3	500,6	0,20	2,61	
	15422	480,3	66,9	68,3	12,1	31,2	59,5	391,3	0,15	2,58	
	15468	483,7	68,9	67,9	10,9	24,5	69,5	430,0	0,16	2,24	
	15474	484,2	62,2	62,2	11,7	34,9	84,8	532,1	0,16	2,99	
	15496	487,9	68,2	69,5	11,8	35,2	88,5	438,0	0,20	2,99	
	7822	491,5	80,3	79,4	13,2	36,4	75,2	473,2	0,16	2,76	
	15509	495,2	66,4	67,4	14,6	42,5	90,1	476,6	0,19	2,91	
	15523	498,8	73,9	72,5	14,6	43,9	102,9	514,8	0,20	3,02	
	15563	502,8	68,1	67,2	12,8	42,0	79,1	447,3	0,18	3,30	
	15584	506,3	52,8	53,7	13,8	32,5	52,5	251,3	0,21	2,35	
	4	15610	509,6	42,4	42,0	13,2	29,9	35,1	185,7	0,19	2,27
	3	15641	513,8	55,2	52,2	9,0	24,9	96,9	486,0	0,20	2,76
15665		517,8	40,2	39,7	8,9	29,9	67,6	326,1	0,21	3,34	
15691		521,6	43,5	41,4	9,6	29,1	72,4	403,0	0,18	3,05	
15720		526,0	47,5	45,2	9,9	27,4	71,3	430,4	0,17	2,76	
15748		529,7	44,7	44,7	10,7	29,4	71,1	404,4	0,18	2,76	
15783		533,8	45,6	45,2	10,7	27,6	68,6	329,5	0,21	2,57	
15811		538,0	47,5	46,1	10,5	28,8	50,5	331,4	0,15	2,75	
15853		542,2	45,4	45,0	10,6	27,4	65,2	316,8	0,21	2,59	
15870		546,4	53,0	53,8	15,5	39,5	118,7	592,9	0,20	2,55	
2	15902	550,5	51,4	54,2	10,2	23,9	35,8	196,4	0,18	2,34	
1	15938	554,6	2,8	3,2	32,5	?	2,2	5,2	0,42	?	

Table 1

4.5.2. Minéralogie magnétique du forage EST342

Les mêmes approches que précédemment ont été abordées pour ce forage, afin de pouvoir comparer les similitudes et différences des forages pour un même niveau géologique, mais à une distance d'une trentaine de kilomètres plus au Sud-Ouest. L'étude de ce forage est analytiquement moins poussée car seul les paramètres clefs qui soulignent le mieux les variations minéralogiques magnétiques, ont été mesurés.

La susceptibilité magnétique a d'abord été comparée à l'ARN (Fig. IV.29), puis à l'ARA pour mieux cibler les minéraux ferrimagnétiques de moyenne coercivité (Fig. IV.29b) et enfin avec HIRM pour cibler les minéraux ferrimagnétiques de plus haute coercivité (Fig. IV.29c).

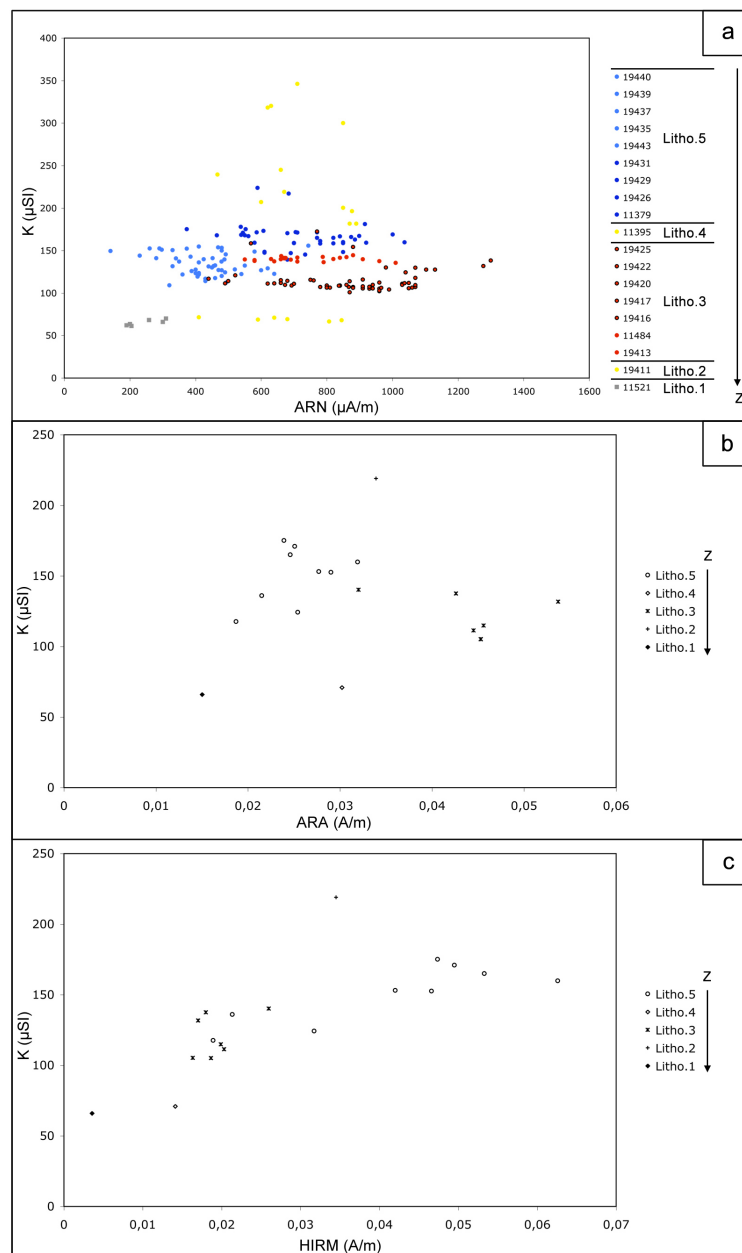


Figure IV.29: Données de susceptibilité et de rémanence pour les échantillons des lithologies 1 à 5 du forage EST342. (a) K en fonction de ARN pour chaque lithologie repérée dans le forage; (b) K en fonction de ARA (100mT) par lithologie et (c) K fonction de HIRM (haute coercivité) pour les 5 lithologies du forage EST342.

Le niveau plus argileux (lithologie 5) présente une large gamme de susceptibilités magnétiques pour une variabilité modérée de l'ARN et de l'ARA, alors que les niveaux plus silteux ont une ARN et ARA plus forte pour une variabilité de susceptibilité faible et de moyenne intensité. Les niveaux silteux (lithologie 3) sont donc plus riches en minéraux ferrimagnétiques que les niveaux plus argileux. Les niveaux carbonatés (lithologies 1 et 2) sont très faibles en susceptibilité et en rémanence, à cause de la pauvreté en argile et en grains ferrimagnétiques. La lithologie de transition 4 possède un comportement singulier car elle est riche en carbonate et argile et présente une forte susceptibilité et un signal ARA et HIRM non négligeables. Ce niveau semble donc posséder des grains ferrimagnétiques de forte coercivité. Les niveaux plus argileux sont, eux, plus coercitifs, avec des HIRM relativement élevées, qui prouvent que ces niveaux possèdent des grains ferrimagnétiques de petite taille (et/ou des minéraux tels que goethite et/ou hématite).

La taille des minéraux magnétiques de ces différents niveaux ont été évalués à l'aide des paramètres S-ratio/K, ARAs/ARIs et χ_{ARA}/K qui sont décrits au chapitre III.3.3.2 (Fig. IV.30). On constate une différence de comportement entre le Callovien et l'Oxfordien. Tous les paramètres ont de plus fortes valeurs dans le Callovien (lithologie 3) et de plus faibles valeurs dans l'Oxfordien inférieur (lithologie 5). Les niveaux de transition des lithologies 1 et 4 ont des valeurs qui restent fortes alors qu'elles sont plus riches en carbonate. Des minéraux de haute coercivité doivent exister dans ces niveaux, ou alors ils ont de grande taille. Seule la lithologie 2 (base du Callovien moyen) présente, comme on s'y attend pour une lithologie argilo-carbonatée, de faibles valeurs à cause de la faible concentration en minéraux ferrimagnétiques. La lithologie 3, enrichie en silt, semble avoir de plus gros grains ferrimagnétiques que la lithologie, 5 plus argileuse.

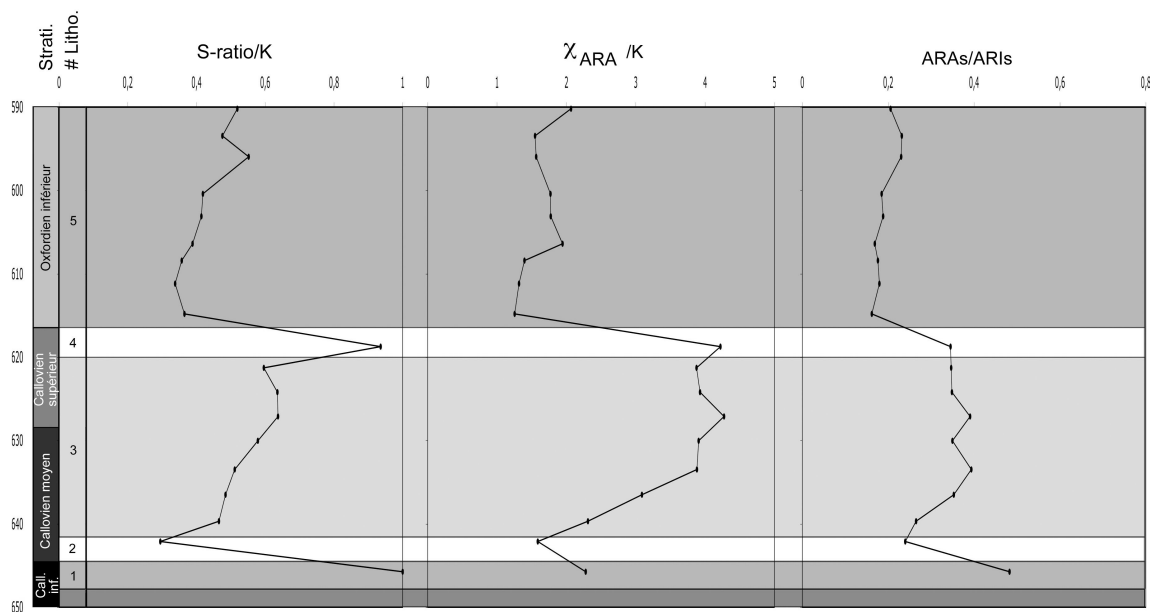


Figure IV.30: Paramètres magnétiques permettant d'évaluer la taille des grains ferrimagnétiques pour les différentes lithologies.

Les analyses de concentration et de nature des grains ferrimagnétiques (Fig. IV.31) montrent que le Callovien diffère de l'Oxfordien. Cette concentration peut-être soulignée par les paramètres ARN et ARAs, qui sont élevés dans la lithologie silteuse 3 et plus faibles dans les zones plus argileuses et carbonatées (lithologies 1, 2, 4 et 5). Le paramètre de susceptibilité (sensible à la quantité d'argile) montre que les lithologies silteuses possèdent une concentration argileuse constante et moindre que dans la lithologie 5 (quasiment deux fois plus concentrée); c'est l'inverse que l'on observe pour la quantité de grains ferrimagnétiques de la lithologie 3. Plus précisément, la concentration en grains ferrimagnétiques de faible et moyenne coercivités, caractérisée par le paramètre $(ARA_{(-50mT)} - ARA_{(-60mT)})/ARAs$, montre qu'elle est plus faible dans les zones silteuses que dans les zones plus argileuses. Leur concentration est particulièrement variable à la base de la lithologie 3 où ce paramètre fluctue de 0,01 à 0,04. Par contre, la lithologie 3 est plus riche en grains plus coercitifs avec une ARAs trois fois plus importante que pour la lithologie 5 argileuse. Enfin, le paramètre HIRM/K, qui est utilisé comme un proxy de la greigite, montre des valeurs importantes dans les lithologies argileuses favorables à leur formation. Il est en revanche bien inférieur dans les lithologies silteuses, à la faveur de grains plus coercitifs telles que les (titano)-magnétites.

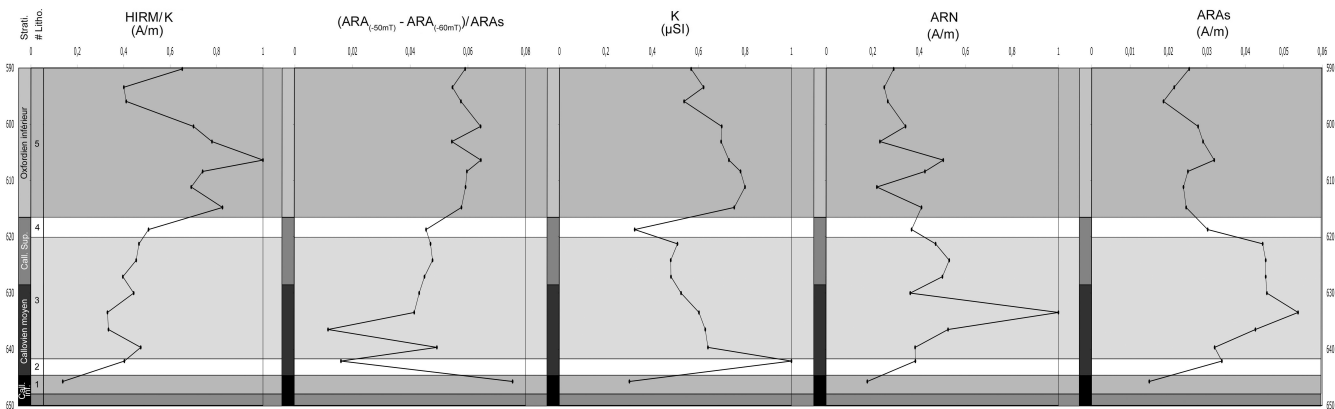


Figure IV.31: Données magnétiques traçant les concentrations et la nature des grains ferrimagnétiques.

Les données des courbes d'acquisition de l'ARI pour les différentes lithologies (Fig. IV.32) montrent des comportements quasi-identiques entre les lithologies 3 et 5 pourtant minéralogiquement différentes. La lithologie 4, repérée par les analyses magnétiques précédentes comme riche en minéraux ferrimagnétiques, possède le même comportement que les lithologies qui l'encadrent. Les autres lithologies de transition (lithologies 1 et 2) ont des intensités, comme on s'y attend, beaucoup plus faibles. Plus précisément, on peut constater que 50% de l'ARI est acquise dès 40 à 50 mT (application de champ DC) et 90% dès 100 à 150 mT de champ DC, dans la lithologie silteuse 3. La lithologie plus argileuse possède une acquisition de 50% d'ARIs dès 60 à 70 mT de champ DC et 90% pour 300 à 400 mT de champ DC. Les lithologies de transition sont intermédiaires, entre le comportement des lithologies 3 et 5. Cet aspect montre bien que les grains ferrimagnétiques de petite taille des zones argileuses sont plus coercitifs (puisque il y a résistance à l'aimantation). Il faut des champs plus forts pour aboutir à une même valeur d'aimantation que pour des grains moins coercitifs.

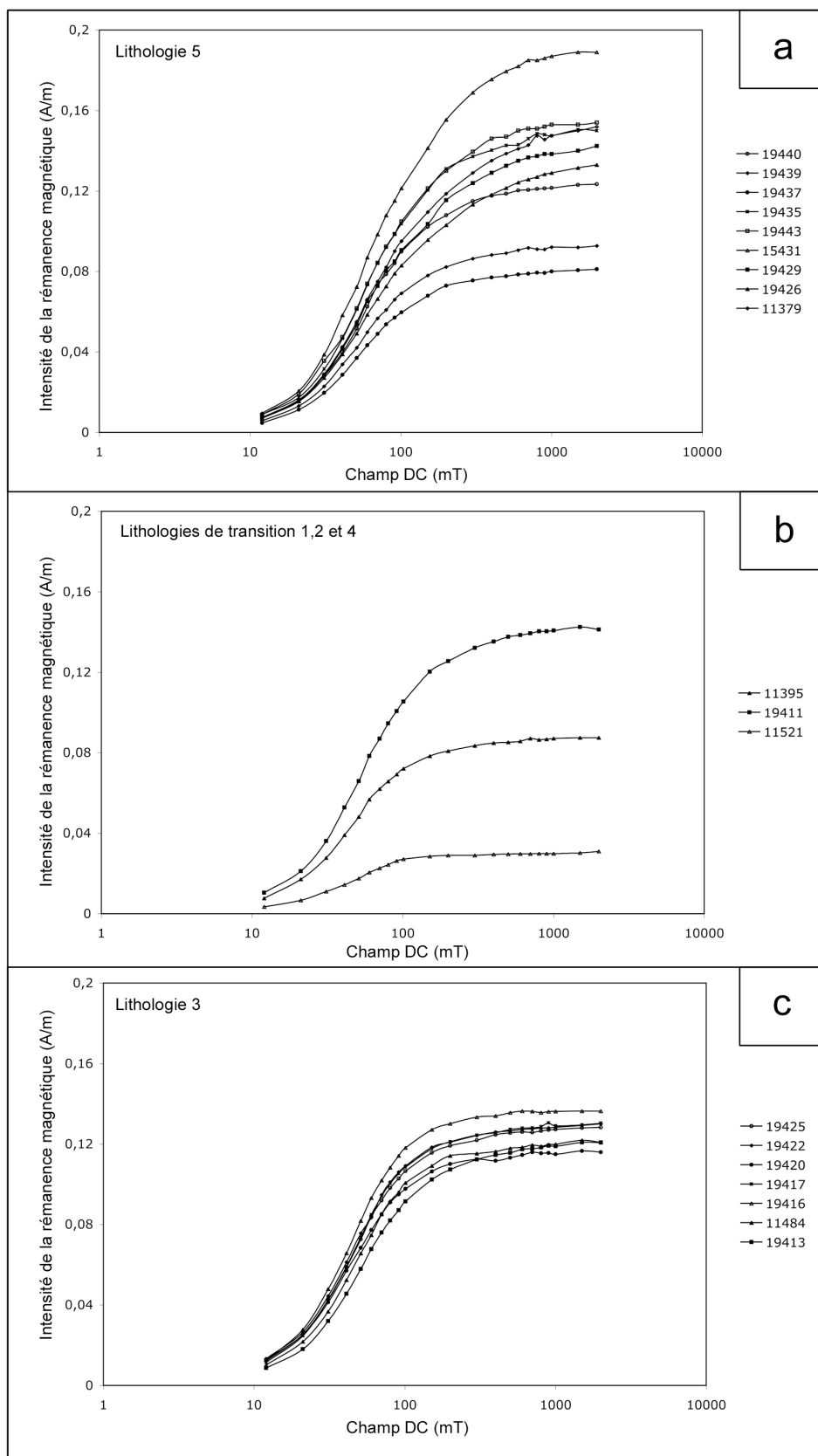
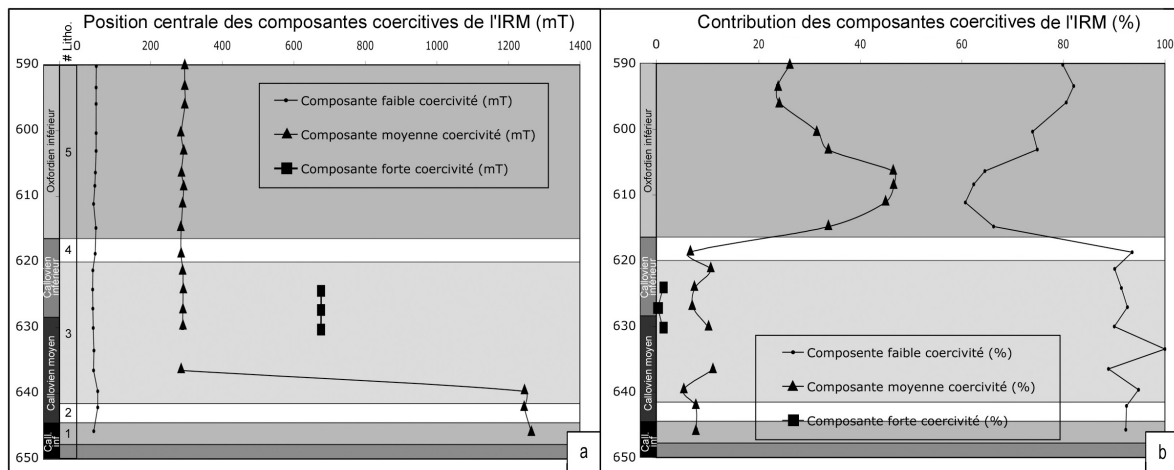


Figure IV.32: Courbes d'acquisition d'ARI pour un échantillon de chaque tronçon du forage EST342 dans la lithologie 5 argileuse (a), dans les lithologies de transition argilo-carbonatées (lithologies 1,2 et 4) (b) et dans la lithologie 3, argilo-silteuse (c).

Après avoir fait le bilan des contributions des familles de coercivité, en utilisant le logiciel IRMUNMIX (www.geol.uu.nl/~forth/software/irmunmix/index.html; Fig. IV.33), le Callovien apparaît comme nettement différent de l'Oxfordien avec des contributions de “faible coercivité” (centrées autour de 40-50 mT; Fig. IV.33.a), beaucoup plus importantes dans la lithologie silteuse 3 (Fig. IV.33.b). La famille de moyenne coercivité, de valeur centrée autour de 250-300 mT (Fig. IV.33a) est beaucoup plus importante dans la lithologie argileuse 5 (Fig. IV.33.b), avec un maximum au maximum d'argilosité, et qui semble diminuer progressivement au-delà. Par ailleurs, on constate qu'au niveau du passage des lithologies argilo-carbonatées en base du Callovo-Oxfordien vers le niveau argilo-silteux 3, les lithologies possèdent de très fortes coercivités (centrées à plus de 1T), caractérisant peut-être la présence d'hématite et/ou de goëthite, mais dont la contribution est négligeable (< 1%). Cette analyse confirme donc que la lithologie 3 est composée de grains ferrimagnétiques dont la coercivité est faible (gros grains); c'est l'inverse dans la lithologie 5 (petits grains).

Figure IV.33: Synthèse des analyses ARI avec le logiciel de simulation IRMUNMIX, le long du forage EST342. (a) champ coercitif moyen de la population étudiée et (b) pourcentage des contributions des 3 familles simulées.



L'analyse des spectres de coercivité, qu'ils soient naturels ou artificiels (Fig. IV.34), en utilisant les mêmes techniques que précédemment pour les tronçons et le forage EST211, montre également une différence entre les lithologies argileuse et silteuse. Si la position (i.e. champ coercitif moyen de la population analysée) des familles coercitives dans les spectres de coercivité naturelle ne montre pas de différence entre les différentes lithologies (Fig. IV.34a), leur intensité et leur largeur (i.e. mélange de différentes familles) varient entre zones argileuses et zones silteuses (Fig. IV.34.b et c). Les zones silteuses (lithologie 3) possèdent de plus fortes intensités et des largeurs moins importantes, soulignant la plus forte concentration en grains de faible et moyenne coercivités, et bien distinctes en taille les uns des autres. Après aimantation artificielle, on retrouve les mêmes aspects caractéristiques concernant la position, l'intensité et les largeurs des différentes familles simulées (Fig. IV.34d,e et f).

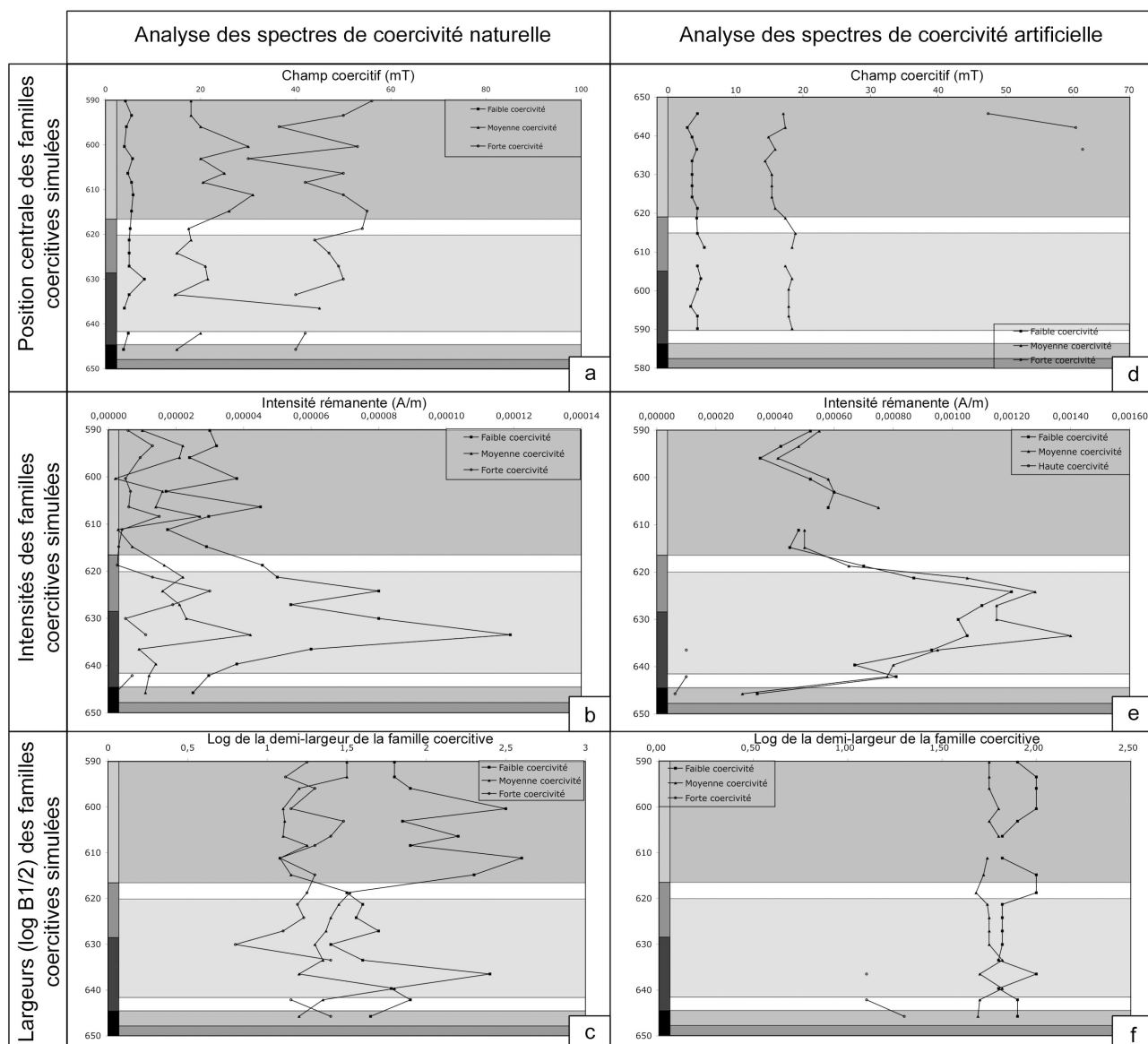


Figure IV.34: Synthèse des analyses de spectres de coercivité naturelle (ARN; a, b, c) et artificielle (ARA; d, e, f) le long du forage EST342.

4.5.3. Anisotropies magnétiques dans le forage EST211

L'organisation des minéraux argileux, à l'aide de l'ASM (principalement), et celle des minéraux ferrimagnétiques, à l'aide des mesures d'AARA, vont permettre d'observer les relations entre nature, taille et concentration des minéraux et leurs orientations dans la roche.

4.5.3.1. Publication Esteban et al. (2006) au C. R. Geoscience



Available online at www.sciencedirect.com



C. R. Geoscience 338 (2006) 867–881



<http://france.elsevier.com/direct/CRAS2A/>

Surface Geosciences

The Callovo-Oxfordian argillites from the eastern Paris Basin: Magnetic data and petrofabrics

Lionel Esteban^{a,b,*}, Jean Luc Bouchez^a, Alain Trouiller^b

^a LMTG/OMP, UMR-CNRS 5563, GdR FORPRO, université Paul-Sabatier, 14, av. Édouard-Belin, 31400 Toulouse, France

^b ANDRA, parc de la Croix-Blanche, 1–7, rue Jean-Monnet, 92298 Châtenay-Malabry, France

Received 16 June 2005; accepted after revision 28 March 2006

Available online 18 May 2006

Written on invitation of the Editorial Board

Abstract

A set of regularly spaced specimens, made up of dark-coloured calcareous argillites, were collected from borehole-cores from the Early Callovia up to the Middle Oxfordian, in the eastern Paris Basin. These specimens have been studied for their magnetic susceptibility, natural and artificial remanence, and for their anisotropy of magnetic susceptibility. Compared with sulfate, carbonate and iron contents, these magnetic properties provide information on both the nature and the relative amounts of the constitutive minerals. To a first approximation, these data outline the main end-members of these argillites, namely (i) carbonate-enriched and less susceptible, (ii) clay-enriched and more susceptible, and (iii) more remanent and partly due to the silt fraction. The middle of the Callovo-Oxfordian formation, called the maximum clay zone, is marked by the highest recorded susceptibility, mainly due to the paramagnetic iron-bearing clay minerals, and by a rather low remanence. The anisotropy of susceptibility provides information on the petrofabric of mostly the clay fraction. The fabric is highly planar, in agreement with the subhorizontal preferred orientation of the clay platelets, but the always present linear anisotropy of the argillites, although modest in strength, points to ~north–south trending directions throughout most of the formation. These directions agree with the detrital fractions coming from the northern Rhineland, Bohemian and London–Brabant massifs. *To cite this article: L. Esteban et al., C. R. Geoscience 338 (2006).*

© 2006 Académie des sciences. Published by Elsevier Masson SAS. All rights reserved.

Résumé

Les argilites callovo-oxfordiennes de l'Est du bassin de Paris : données magnétiques et pétrofabrique. La formation des argilites du Callovo-Oxfordien, dans l'Est du bassin de Paris, a été étudiée à l'aide d'un échantillonnage régulièrement espacé verticalement, pour sa susceptibilité magnétique, pour ses propriétés de rémanence et pour son anisotropie de susceptibilité magnétique. Susceptibilité et rémanence, comparées aux teneurs en sulfate, en carbonate et en fer, renseignent sur la nature et les proportions relatives des constituants du sédiment. Ces propriétés permettent de remonter aux principales caractéristiques de cette série, avec un pôle carbonaté à faible susceptibilité, un pôle argileux à forte susceptibilité, et un pôle à forte rémanence magnétique, attribué en partie à la fraction silteuse. Le Callovo-Oxfordien est caractérisé par une susceptibilité magnétique maximale, essentiellement due au paramagnétisme des argiles, et par une rémanence modeste. L'anisotropie de la susceptibilité renseigne sur la pétrofabrique de la roche. Celle-ci est très planaire, liée à l'orientation subhorizontale des plaquettes d'argiles. La linéation magnétique, bien que peu prononcée, présente, dans le plan du litage horizontal, une direction proche de nord–sud sur la quasi-totalité de la formation du

* Corresponding author.

E-mail address: esteban@lmtg.obs-mip.fr (L. Esteban).

Callovo-Oxfordien. Ces données sont compatibles avec des apports sédimentaires issus des massifs du Nord (Rhénan et Bohémien et Londres–Brabant). *Pour citer cet article : L. Esteban et al., C. R. Geoscience 338 (2006).*

© 2006 Académie des sciences. Published by Elsevier Masson SAS. All rights reserved.

Keywords: Clay; Sediment; Callovian; Oxfordian; Susceptibility; Remanence; Anisotropy; Paris Basin; France

Mots-clés: Argile; Sédiment; Callovo-Oxfordien; Susceptibilité; Rémanence; Anisotropie; Bassin de Paris; France

Version française abrégée

Introduction

La formation des argilites du Callovo-Oxfordien de l'Est du bassin de Paris a été subdivisée verticalement en 10 niveaux lithologiques [9,13,19], que nous avons numérotés de 1 à 10 (Fig. 1). Plus de 600 échantillons cylindriques ($\sim 10,8 \text{ cm}^3$) ont été collectés tous les 3 à 4 m le long du forage oblique EST211, ainsi qu'au sommet et à la base du Callovo-Oxfordien argileux, à l'aide des forages verticaux MSE101 et HTM102. Ces échantillons sont préservés des perturbations physiques et chimiques liées à la proximité de la surface. Ils sont étudiés pour leur susceptibilité magnétique, leur rémanence magnétique et leur anisotropie de susceptibilité magnétique, qui sont comparées à leur concentration en sulfate, carbonate et fer (Tableau 1). Ces grandeurs permettent de préciser la nature et la concentration relative des minéraux dans le sédiment, ainsi que leur orientation préférentielle, à l'aide de l'anisotropie de la susceptibilité magnétique (ASM). On peut alors tenter de remonter à l'origine des apports sédimentaires, ainsi qu'à leur variabilité, au sein de la formation argileuse.

Données magnétiques

Susceptibilité et rémanence

La capacité des minéraux à s'aimanter en présence d'un champ magnétique faible, mesurée par leur susceptibilité magnétique K , est comparée à leur capacité à conserver leur aimantation naturelle, ou aimantation rémanente (NRM; Fig. 2). Sur la Fig. 3, susceptibilité et rémanence, notées K^* et NRM*, sont normalisées au maximum rencontré dans la formation. Les valeurs de K reportées en fonction de NRM (Fig. 2) traduisent deux tendances liées à la nature des porteurs magnétiques : (1) les échantillons distribués le long de l'axe de la susceptibilité, et allant de l'origine (riche en carbonate) jusqu'aux valeurs maximales ($K = 196 \mu\text{SI}$, valeurs classiques observées sur les marges passives [12]), sont les plus riches en argiles : c'est le cas de la lithologie 5; (2) les échantillons plus rémanents (maximum = $1890 \mu\text{A m}^{-1}$), tirés vers la droite

du diagramme (Fig. 2), correspondent principalement aux lithologies les plus silteuses. K et NRM, comparés aux concentrations en sulfate, carbonate et fer (Fig. 3), aident à caractériser la nature des porteurs du signal magnétique. Dans les lithologies 1 et 10, riches en carbonate, tous les paramètres (sauf le carbonate) ont de faibles valeurs. Dans la lithologie 5 déjà citée, K^* est supérieur à NRM*, et la concentration maximum en fer souligne la dominance des minéraux paramagnétiques porteurs du fer, c'est-à-dire des argiles et, éventuellement, de la chlorite. La concentration en sulfate comparée à celle du fer et à la rémanence, aide à diagnostiquer la présence de sulfure de fer para- (pyrite) ou ferrimagnétique (pyrrhotite : Fe_7S_8 , ou greigite : Fe_3S_4) [6,7,18,20]. Les valeurs élevées en sulfate, fer et celle de la rémanence permettent de soupçonner la présence de greigite : c'est le cas de la moitié supérieure de la lithologie 3. Sulfate et fer élevés, mais avec une rémanence faible, indiquent la présence de pyrite : c'est le cas de la lithologie 5 (Fig. 7b). Enfin, la concentration élevée de fer, associée à une forte rémanence, pour de faibles concentrations en sulfate, indique la présence d'oxydes ferrimagnétiques : titano-maghémite ou titano-magnétite (Fig. 7a) : c'est le cas de la transition entre les lithologies 3 et 4, ainsi que de la lithologie 7.

Minéralogie magnétique

La coercivité de la rémanence « naturelle » (ou aimantation résiduelle après désaimantation sous champ alternatif, AF) et « artificielle » (ou aimantation résiduelle après aimantation puis désaimantation AF) pour des valeurs de désaimantation partielle comprises entre 5 et 20 mT, 20 et 40 mT, et 50 et 100 mT, respectivement pour la faible, moyenne et haute coercivité (Fig. 4), donne des indications sur la concentration relative en oxyde et sulfure de fer. La famille de plus faible coercivité « naturelle » porte quelques pour-cent de la rémanence totale et présente des valeurs négatives (lithologies 5 et 8), signe de gyrorémanence, un effet d'aimantation spontanée oblique sur l'axe de désaimantation et attribué à la greigite ferrimagnétique [25]. La rémanence « artificielle » est principalement portée par les familles de moyenne et de haute coercivité, qui contiennent chacune 30 à 50% de l'aimantation totale.

Un pourcentage égal suggère que les populations minérales sont de même nature, à la taille de grain près. C'est le cas de la lithologie 7, où les oxydes de fer semblent dominer.

Les mesures d'aimantation sous champs plus forts (IRM) sont utilisées pour tracer la présence de la greigite via le paramètre HIRM/K [8,21] qui minimise l'influence des oxydes de fer, ou pour détecter les oxydes de fer [1,10] et/ou l'absence de dissolution sélective de magnétite via le *S-ratio* [8]. Ainsi, la lithologie 3 s'enrichit, pendant son dépôt, en oxydes de fer, corroborant une période d'apport silteux. La lithologie 5, la plus riche en argile, présente les plus fortes concentrations en sulfure de fer ferrimagnétique et les plus faibles concentrations en oxyde de fer, ce qui souligne une période d'absence d'apport silteux dans un milieu très réducteur favorisant la formation de grains authigènes de sulfure de fer (greigite, pyrite...).

La pétrofabrication

L'anisotropie de la susceptibilité magnétique est représentée par un ellipsoïde d'axes $K_1 \geq K_2 \geq K_3$ [2,3, 15], qui permettent de calculer les paramètres suivants (ici en %) : degré d'anisotropie $P = ([K_1/K_3] - 1) \times 100$, anisotropie planaire $F = ([K_2/K_3] - 1) \times 100$, et anisotropie linéaire $L = ([K_1/K_2] - 1) \times 100$. Le degré d'anisotropie, principalement dû au litage des argilites parallèle à l'orientation moyenne des plaquettes d'argiles, prend sa valeur minimum dans les lithologies carbonatées. Une anisotropie linéaire, bien que peu prononcée, de 0,14% en moyenne et atteignant 0,3% dans les lithologies 3 et 7 les plus silteuses, est mesurable dans le plan du litage (Tableau 1).

Les échantillons ont été réorientés par rapport au Nord magnétique, en utilisant l'orientation du forage incliné EST211 et en postulant que le litage est horizontal, ce qui est vérifié à une exception près (T1-471). Pour les forages verticaux, la réorientation a été effectuée par la mesure du vecteur rémanent de faible coercivité, méthode classique en paléomagnétisme [4, 28,29], dont l'inclinaison, très proche de celle du site de forage, est de l'ordre de $+65^\circ$. L'azimut de la linéation, donné par l'axe K_1 de l'ASM, apparaît alors très constant sur l'ensemble de la formation, autour de nord-sud, à l'exception des lithologies 3 et 7, où une composante NNW-SSE semble apparaître (Fig. 5). La dispersion des azimuts a été traitée par la statistique de *bootstrap* (Fig. 6) [5,24]. Elle est faible ($\pm 8^\circ$) pour les lithologies riches en carbonate (1 et 10), où l'ellipsoïde est triaxial, et augmente progressivement pour les lithologies argileuses (une partie de 3, 5, 6 et 8) et silteuses (une partie de 3 et 7), pour atteindre $\pm 20^\circ$ dans les litho-

logies de transition (2, 4 et 9), où l'ellipsoïde est presque uniaxial planaire.

Discussion

La rémanence magnétique (NRM) est très sensible à la présence de grains ferrimagnétiques, oxydes de fer (magnétite, magnétite) et/ou sulfures de fer (pyrrhotite ou greigite, mais non pyrite) [18,22,26]. Dans les sédiments contenant de la matière organique, les oxydes proviennent plutôt de la fraction détritique, alors que les sulfures sont issus du milieu réducteur, comme l'indiquent les framboïdes de pyrite (Fig. 7b), souvent observées dans les argilites du Callovo-Oxfordien [9], et parmi lesquelles les sulfures ferrimagnétiques se sont développés. L'abondance des grains ferrimagnétiques est donnée par l'écart à l'axe vertical du diagramme de la Fig. 2. Leur nature, oxyde ou sulfure, exige un examen minutieux des teneurs en fer et en sulfate (Fig. 3) ainsi que d'autres données (Fig. 4). Par exemple, les maximums de rémanence qui apparaissent à la base et au sommet de la lithologie 3 sont attribués à la présence d'oxydes de fer, car les valeurs en sulfate sont faibles pour une teneur en fer importante. Au contraire, à proximité de la transition Callovien moyen-supérieur de la lithologie 3, la rémanence, le sulfate et le fer sont importants, ce qui suggère la présence de greigite, argument renforcé par l'effet de gyrorémanence, et par un pic de HIRM/K souvent associé aux niveaux les plus riches en argile (Fig. 4). La très faible perméabilité de ces niveaux est peut-être à l'origine de la formation et/ou de la préservation de la greigite, qui semble associée à la pyrite.

Ainsi, la lithologie 3 connaît-elle un enrichissement progressif en oxyde de fer amené par la fraction silteuse détritique, dans un environnement où le sulfure de fer authigène est présent. La lithologie 5 connaît le plus fort taux d'argile autour de -490 m, riche en sulfure de fer et probablement en greigite, caractères qui diminuent progressivement jusqu'à la mise en place de la plate-forme calcaire de l'Oxfordien (lithologie 10). De courtes périodes de passées silteuses, riches en oxydes de fer, sont présentes dans les lithologies 7 à 9, mais leurs intensités diminuent avec le taux d'argile, de sulfate et de fer, en relation avec l'enrichissement en carbonate. En terme de séquence sédimentaire, et en accord avec les descriptions stratigraphiques existantes [19], la lithologie 3 apparaît comme une séquence de 3^e ordre divisée en deux épisodes séparés par un changement d'intensité relative de NRM* et K^* , qui a lieu au maximum d'inondation [19], modifiant la nature des apports sédimen-



taires. La lithologie 5, qui a le plus fort apport d'argile, correspond au maximum d'inondation des séquences de 2^e et 3^e ordre qui caractérisent le Callovo-Oxfordien.

L'analyse de la pétrofabrication montre un degré d'anisotropie planaire d'autant plus fort que le taux d'argile est important. Mais une linéation magnétique, malgré sa faible intensité ($\ll 1\%$), est mesurée autour de nord-sud, sauf en ce qui concerne les lithologies riches en silt, où elle est plutôt NNW–SSE. Plutôt qu'effets de vortex, qui orienteraient les particules perpendiculairement à la direction du courant [17,27], nous interprétons ces directions comme traduisant l'orientation préférentielle des plaquettes d'argiles en zone autour d'un axe parallèle aux courants [11,12,16] issus des massifs du Nord, Bohémien et Rhénan [19,20]. La direction NNW–SSE est liée à l'alignement des grains détritiques d'oxydes de fer ferrimagnétiques autour de la direction d'un courant qui semble issu du massif de Londres–Brabant, au nord-ouest.

Conclusion

Dans cette étude, les propriétés magnétiques (susceptibilité, rémanence et paramètres magnétiques) associées à la concentration en sulfate, carbonate et fer sont utilisées comme indicateur de la nature des minéraux et des apports sédimentaires. Elles aident à préciser les principaux caractères lithologiques du Callovo-Oxfordien. Un changement des conditions de dépôt sédimentaire à la fin du Callovien, ainsi qu'une diminution de l'intensité des décharges sédimentaires silteuses pendant l'Oxfordien, sont révélés par la relation $NRM^* > K^*$. Les données de l'anisotropie de la susceptibilité magnétique montrent la stabilité de la direction nord-sud des linéations sur l'ensemble de la formation. Celles-ci sont parallèles aux paléocourants originaires des massifs du Nord de type rhénan, bohémien et Londres–Brabant, où ce dernier fournit préférentiellement des fractions détritiques riches en silt.

1. Introduction

Boreholes undertaken in the eastern Paris Basin, in between the 'Meuse' and 'Haute-Marne' districts, give a unique opportunity to study specimens that are preserved from chemical and physical perturbations due to the proximity of the surface (hydration, oxidation...). This study concerns the dark-coloured, with organic matter, Early Callovian to Middle Oxfordian claystones, containing 35–60% clay minerals, the remaining being shared mainly by calcite and silt [13]. These clay-rich

rocks are called Callovo-Oxfordian argillites [9] and, on the base of the lithological description by ANDRA and P. Pellenard [19], we have subdivided them into lithologies 2 to 9 (Fig. 1). At the base and top of this clay-rich formation, lithologies 1 (Early Callovian) and 10 (Middle Oxfordian) are dominated by limestones.

In this paper, we present (i) magnetic susceptibility and remanence intensity data, and (ii) anisotropy of susceptibility data acquired from regularly spaced specimens collected from the ANDRA borehole cores drilled in the vicinity of the laboratory. Compared with carbonate, sulfate and iron oxide contents, the former data provide information about the nature and relative concentrations of the constituting minerals, and the latter inform on the petrofabric, i.e. lattice and shape preferred orientations of the rock-forming minerals. Thus, in addition to sedimentary characters already described by other authors [13,19], our magnetic data bring new information about the nature of the sedimentary supplies, their variability within the formation, and about the possible origin of these supplies.

2. Sampling procedure

This study concerns two vertical boreholes, HTM102 (lat: 48°27'40.9"N; long: 5°22'6.1"E; $z_{\text{surf}} = 351$ m above sea level) and MSE101 (lat: 48°34'49.5"N; long: 5°16'32.6"E; $z_{\text{surf}} = 260$ m a.s.l.), and the oblique borehole EST211 (lat: 48°29'06"; long: 5°21'25.49"; $z_{\text{surf}} = 368.20$ m a.s.l.) that cuts across the Callovo-Oxfordian argillites at the vicinity of the ANDRA Laboratory (Fig. 1). Six, 30-cm-long cylinders, 9 cm in diameter, come from HTM102 (T1-337, T1-455, T1-450, T1-342) and MSE101 (T1-471, T1-562), from the upper and lower parts of the Callovo-Oxfordian argillites (lithologies 2, 3 and 9). In addition, 46 5-cm-long cylinders come from the oblique EST211 borehole, which was sampled each 3 to 4 m (Fig. 1). A total of 600 cylindrical specimens, of ~ 10.8 cm³ each, the standard volume for magnetic measurements, were collected from these borehole cores. All the specimens have been measured (Table 1) for their magnetic susceptibility and anisotropy using the KLY-3 susceptometer (AGICO Ltd), and using the JR5-A spinner magnetometer (AGICO Ltd) for their natural remanent magnetization (NRM). The LDA-3 demagnetizer/magnetizer (AGICO Ltd) was also used to measure the anhysteretic remanent magnetization (ARM) and the pulse magnetizer MMPM10 (Magnetic Measurements Ltd) for the isothermal remanent magnetization (IRM) of specimens coming from EST211.

4 – Apports du magnétisme dans les argilites

L. Esteban et al. / C. R. Geoscience 338 (2006) 867–881

871

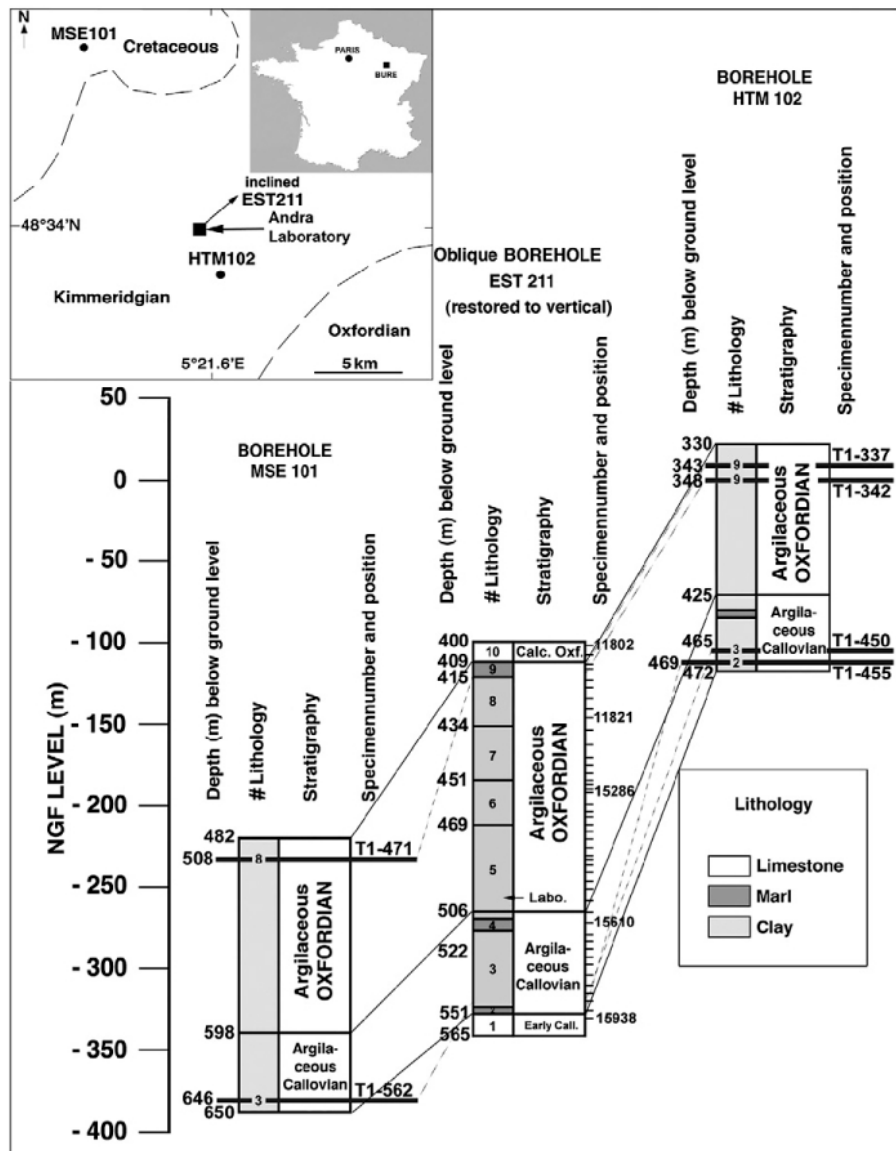


Fig. 1. Site of the ANDRA Laboratory, localization and log of the three boreholes from which the specimens under study were collected (HMT102, MSE101, EST211).

Fig. 1. Site du Laboratoire de l'Andra, localisation et log des trois forages étudiés (HMT102, MSE101, EST211) d'où sont extraits les échantillons de cette étude.

Table 1

Magnetic data used in this study (K_1 , K , NRM, L and P ; see text). For K_1 (magnetic lineations) only their azimuth has been reported since they are close to horizontal (including for the T1-471 core, for which the magnetic foliation dips 33° to the west). For the six vertical cores (T1), each lineation averages $n = 15$ – 20 individual specimens (484 specimens in total). The magnetic remanence values after each NRM and ARM demagnetization between (5–20 mT), (20–40 mT) and (50–100 mT) are synthesized with the HIRM/ K and S-ratio values. CaCO_3 , Fe_2O_3 and SO_4 concentrations are reported in percentage, with their corresponding vertical depth below the ground level

Tableau 1

Données magnétiques utilisées dans ce travail (K_1 , K , NRM, L , P ; voir texte). Pour K_1 , seul l'azimut est reporté, car les linéations sont sub-horizontales (y compris pour le tronçon T1-471). Pour les six tronçons verticaux (T1), chaque ligne est la moyenne de $n = 15$ à 20 échantillons individuels (total : 484 échantillons). Les valeurs de rémanence magnétique restante après démagnétisation sont synthétisées pour la NRM et l'ARM entre (5–20 mT), (20–40 mT) et (50–100 mT), ainsi que les valeurs de HIRM/ K et S-ratio. Les concentrations en CaCO_3 , Fe_2O_3 et SO_4 sont reportées en %, avec les profondeurs verticales de mesures par rapport à la surface

3. Magnetic data

3.1. Susceptibility and remanence

The magnetic susceptibility (K) of a material quantifies its ability to acquire magnetization (M) in the presence of an applied inducing field (H), such that: $m = K \times H$. This ability depends on the addition of three main magnetic behaviours of the constituting rock-forming minerals: dia-, para- and ferro-magnetism *sensu lato*. Diamagnetism reflects the low and negative susceptibility ($\sim -10 \mu\text{SI}$) that is present in any material. In our sediments, calcite and quartz principally only display a diamagnetic contribution. By contrast, para- and ferrimagnetism, mainly due to iron, display a positive susceptibility, of low intensity for paramagnetism ($\sim 100 \mu\text{SI}$), and of high intensity for ferrimagnetism ($\gg 100 \mu\text{SI}$). Silicates including iron in their lattice, such as the clay minerals essentially (smectites, illites), as well as some detrital silicates belonging to the silt fraction (chlorite, glauconite...), have a paramagnetic behaviour. Note that pyrite, the most common iron sulfide FeS_2 , has also a paramagnetic behaviour at room temperature. The ferrimagnetic minerals, characterized by a natural permanent, or remanent magnetization (NRM) in the absence of inducing field, consist mainly of iron oxides (titano-maghemite, titano-magnetite) that usually accompany the silt fraction, itself made of fine-grained erosional products. In addition, some iron sulfides, such as greigite (Fe_3S_4) and/or monoclinic pyrrhotite (Fe_7S_8), have also a ferrimagnetic behaviour [6,7,14,23].

The gross mineralogical nature of the different lithologies is deduced from the comparison between K , which ranges from 10 to $194 \mu\text{SI}$, and NRM, which ranges from 61 to $1416 \mu\text{A m}^{-1}$ (Fig. 2 and Table 1). These values, although rather classical for marginal sea sediments (e.g., [12]), vary greatly across the stratigraphic column, as attested in the K -versus-NRM plots of Figs. 2 and 3. Within a given lithology, K and NRM vary during deposition (Fig. 2b: arrows) according to the respective supplies in carbonate, clay and ferrimagnetic fractions. The area close to the origin corresponds to the limestones of lithologies 1 and 10, and to some carbonate-enriched levels, such as in lithologies 7 and 8. High susceptibility and low remanence characterize mostly the phyllosilicates, namely smectites and illites, which are slightly iron-bearing, in addition to a few other accessory detrital silicates, mostly chlorite. Most specimens from lithology 5 (end of the Late Callovian and base of the Early Oxfordian), the richest in clay minerals, belong to this high K /low NRM category. At

the onset of deposition of this lithology, a rapid increase in susceptibility is noted, up to the highest observed K values that define the maximum clay zone [13]. Then comes a rather strong increase of NRM for maximum K values, followed by a regular decrease in both K and NRM. High remanence specimens, such as mainly in lithology 3, are considered as being enriched in silt fraction, itself ascribed to detrital material made of quartz grains principally, and including some iron oxides responsible for the ferrimagnetism. However, the presence of ferrimagnetic sulfides such as greigite, likely of diagenetic origin, cannot be ruled out (see Section 3.2). The highest NRM values are restricted to the base and top parts of this lithology 3 (Fig. 3), and tentatively attributed to silt-enriched discharges. Finally, we observe that the transitional carbonate-enriched lithologies 2 and 4, located just under and above lithology 3, have K values that indicate the presence of a clay fraction, and have very low NRM values, pointing to a lack in the silt fraction.

Fig. 3 helps comparing between K and NRM (normalized with respect to the maximum values encountered in the studied specimens), on the one hand, and the normalized values of CaCO_3 , SO_4^{2-} and total Fe_2O_3 , on the other hand. Note that our samplings, from which K and NRM are measured, have neither the same frequency, nor the same exact localization than the chemical data that was extracted from the ANDRA database. We readily observe that CaCO_3 -rich lithologies (1 and 10) have the lowest K , NRM and iron-oxide values. This contrasts with the clay-rich lithology 5, where K is high, NRM relatively low, while iron is at its maximum. This high K /low NRM character in the presence of high iron content strengthens the role of paramagnetism as the main magnetic carrier. In turn, this points to the dominance of the clay minerals in the susceptibility signal, in addition to a few detrital silicate grains containing iron such as chlorite. The SO_4 values, when compared with Fe_2O_3 and NRM, help deciphering the nature of the iron sulfide. Three main cases are distinguished: (1) dominance of the ferrimagnetic sulfide (likely greigite [23]) is suspected when high SO_4 , Fe_2O_3 and NRM values are encountered, like in the upper half-part of lithology 3. This portion of the Callovo-Oxfordian formation is also characterized by its (normalized) NRM values higher than its (normalized) K values ($\text{NRM}^* > K^*$; Fig. 3); (2) dominance of the paramagnetic sulfide (pyrite) is likely when low NRM values are observed in presence of high Fe_2O_3 values, like in most of lithology 5, the richest in clay; and (3) dominance of ferrimagnetic iron-oxides (titano-maghemite or -magnetite) is most probable when SO_4 is

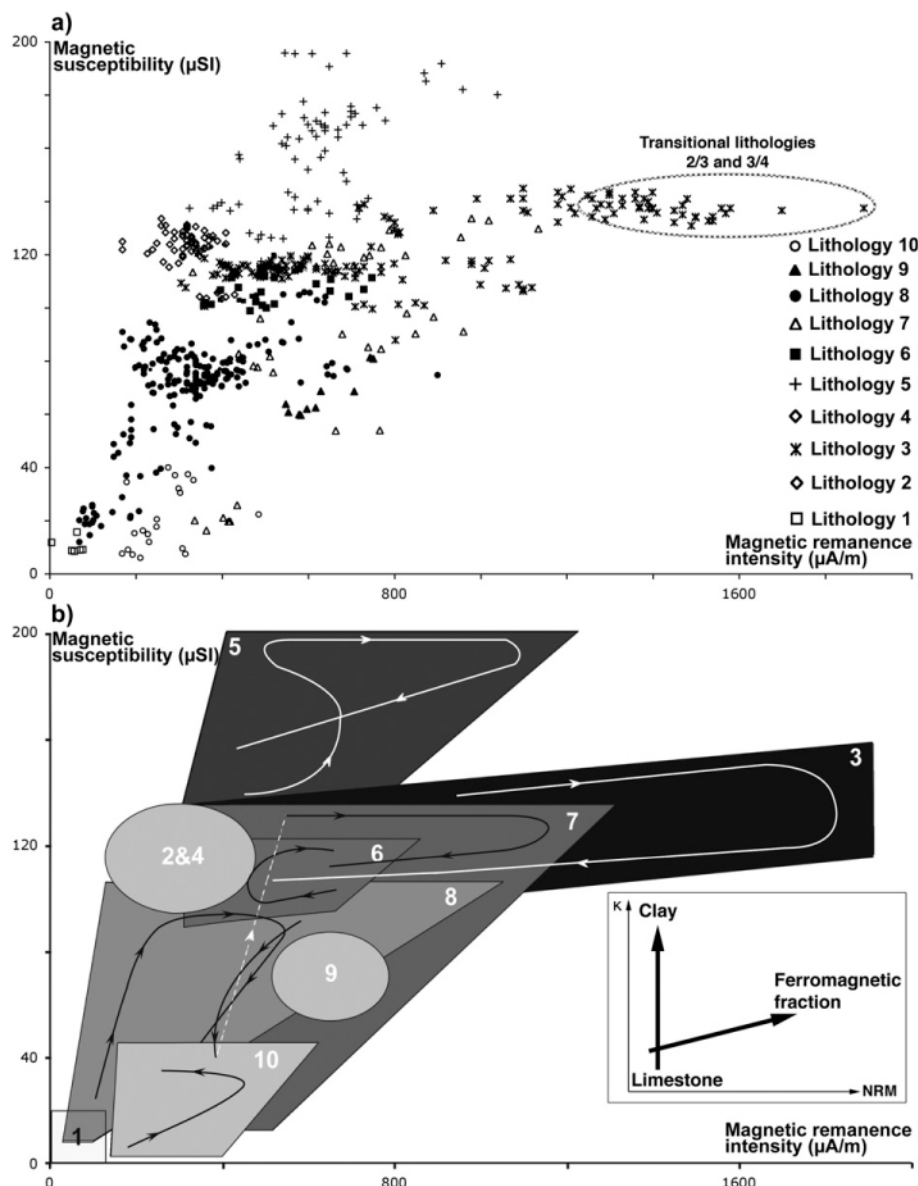


Fig. 2. Magnetic susceptibility as a function of magnetic remanence. (a) Individual data with symbols referring to lithologies 1 to 10. (b) Analysis lithology by lithology; arrows indicate evolution of (K , NRM) with time.

Fig. 2. Susceptibilité magnétique en fonction de la rémanence magnétique. (a) Données individuelles ; les symboles correspondent aux lithologies numérotées de 1 à 10. (b) Analyse lithologie par lithologie ; les flèches indiquent l'évolution de (K , NRM) avec le temps.

low and both NRM and Fe_2O_3 are high, like at the transition between lithologies 3 and 4. The nature of these ferrimagnetic carriers is tentatively refined using magnetic mineralogy methods.

3.2. Magnetic mineralogy

The coercivity of the magnetic carriers, or their ability to retain a permanent magnetization, was first tested through step-by-step AF-demagnetization up to

100 mT of one specimen every 3–4 m. Coercivity was further tested by imparting an anhysteretic remanent magnetization (ARM; AF: 100 mT and DC: 0.5 mT) followed by the same AF-demagnetization. These data were used to calculate the partial magnetizations (pNRM and pARM) remaining in-between the low- (5–20 mT), medium- (20–40 mT) and high- (50–100 mT) demagnetization windows (Fig. 4a and b) that helped to separate the mineral coercivities into three categories. Boundaries between windows were chosen on

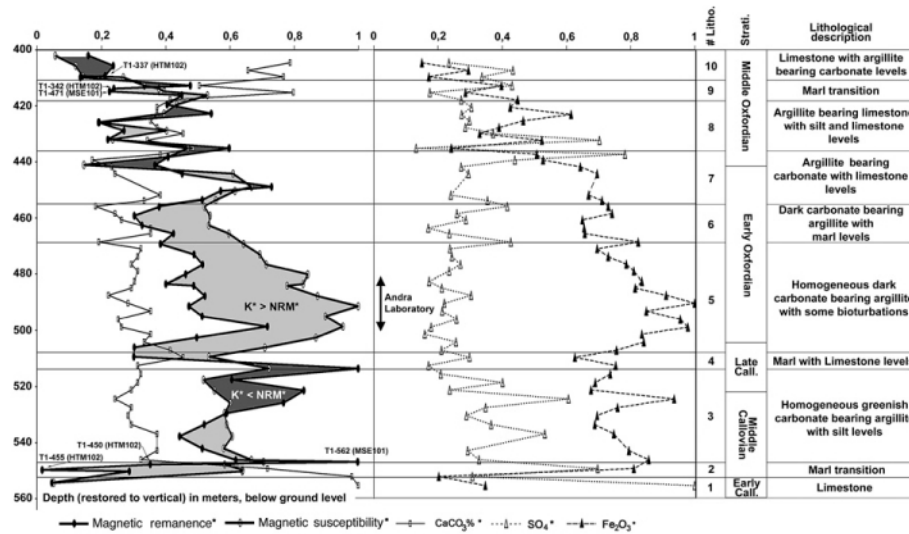


Fig. 3. Composite log from EST211, MSE101 and HTM102 boreholes, showing the relationships between magnetic susceptibility, remanence and CaCO₃ (left-hand side), and SO₄ and Fe₂O₃ contents (right-hand side). The ANDRA lithological subdivision has been here numbered from 1 to 10. Note the location of the ANDRA Laboratory at the maximum of susceptibility (maximum clay zone). The maximum values used for the normalization are: $K = 196 \mu\text{SI}$; $\text{NRM} = 1890 \mu\text{A m}^{-1}$; $\text{CaCO}_3 = 100\%$; $\text{SO}_4 = 3410 \text{ mg kg}^{-1}$, and $\text{Fe}_2\text{O}_3 = 5.17\%$. Light-grey areas correspond to $K^* > \text{NRM}^*$ and the dark-grey ones to $K^* < \text{NRM}^*$.

Fig. 3. Log composite des forages EST211, MSE101 et HTM102, allant du Callovien inférieur à l'Oxfordien moyen, montrant les relations entre valeurs (normalisées au maximum rencontré : *) de susceptibilité, de rémanence magnétiques et de CaCO₃ (à gauche), et les teneurs en SO₄ et Fe₂O₃ (à droite). Le découpage lithologique est celui de l'Andra, que nous avons numéroté de 1 à 10. Noter la position du laboratoire de l'Andra, au maximum de susceptibilité (maximum de la fraction argileuse). Les valeurs maximum ayant servi à la normalisation sont : $K = 196 \mu\text{SI}$; $\text{NRM} = 1890 \mu\text{A m}^{-1}$; $\text{CaCO}_3 = 100\%$; $\text{SO}_4 = 3410 \text{ mg kg}^{-1}$; $\text{Fe}_2\text{O}_3 = 5.17\%$. Les zones en gris clair correspondent à $K^* > \text{NRM}^*$ et les zones en gris foncé à $K^* < \text{NRM}^*$.

the basis of the main stable components of the natural remanence vectors, a classical palaeomagnetic technique [29]. For the sake of comparison, these boundaries were used for both types of partial demagnetization.

We observe that the low and medium pNRM windows (Fig. 4a) have very low values (~5–10%), while the high pNRM window carries more than 50% of total remanence. The lowest pNRM window sometimes display negative values, a character pointing to a gyroremanent effect, a spontaneous oblique magnetization appearing during demagnetization [10], attributed to the ferrimagnetic greigite. By contrast, the ARM is mostly carried by the medium and high pARM windows, both of equal value and retaining ~40% of the total remanence. This suggests that the medium- and high-coercivity windows, of both the NRM and ARM experiments, are carried by the same mineral species. They may, however, differ in grain sizes, since the NRM and ARM intensities are different [10].

Further characterization refinement was tempted using high DC-fields with a pulse magnetizer, to look for the ferrimagnetic sulfide, which has a higher coercivity

than magnetite. Note that in our sediments, hematite and goethite, the highest coercivity phases are not observed, since the magnetic saturation is reached at rather low fields ($\ll 1 \text{ T}$). The S-ratio ($[1 - (\text{IRM}_{-0.3\text{T}}/\text{SIRM}_{2\text{T}})]/2$) of Bloemendal et al., [1], where SIRM is the magnetization at 2-T DC field (pulse magnetizer) imparted parallel to the +Z axis of the specimen, and $\text{IRM}_{-0.3\text{T}}$ is the isothermal magnetization then imparted at 300 mT (pulse magnetizer) parallel to -Z, devoted to erase the low coercivity phases. The high values of the S-ratio (Fig. 4c), usually larger than 0.9, point to the dominance of rather low-coercivity minerals. Alternatively, according to [8], high S-ratios suggest the absence of a selective dissolution of magnetite, a character typical of low permeability sediments. The S-ratio also allows to distinguish between the lower-half of lithology 3, in which the highest values are attributed to a dominance, or preservation, of iron oxides, and the upper-half of lithology 3 and lithology 5, where smaller values point to the presence of ferrimagnetic iron sulfides (in addition to pyrite, see Section 3.1). Ti-Fe oxides were indeed observed in lithology 3 (Fig. 6a), and framboid iron sulfides were observed in lithology 5 (Fig. 6b), with

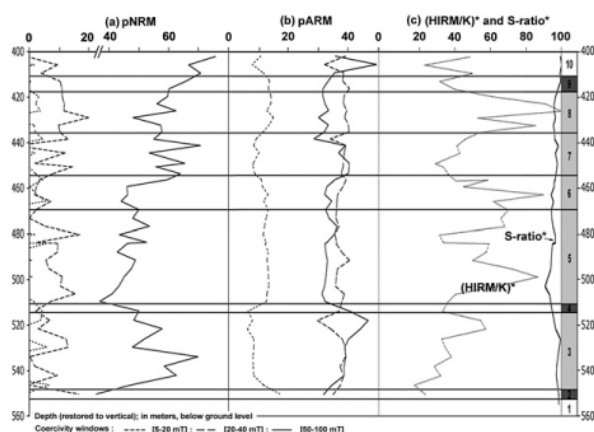


Fig. 4. Magnetic parameters evolution for the mineralogical characterization in the Callovo-Oxfordian argillite formation (normalized and in %) used to characterize the nature of the minerals. From the left to the right: data of the partial demagnetization of the natural remanence (in the coercivity windows indicated): (a) pNRM, and artificial, (b) pARM, (c) parameters HIRM/K and S-ratio (see text) used to trace the greigite and the iron oxides.

Fig. 4. Évolution des paramètres magnétiques (normalisés, en %) permettant de préciser la nature des minéraux de la formation argileuse du Callovo-Oxfordien. De gauche à droite : valeurs de démagnétisations partielles de la rémanence naturelle (dans les fenêtres de coercivité indiquées) : (a) pNRM, et artificielle, (b) pARM, (c) paramètres HIRM/K et S-ratio (voir texte) destinés à tracer la présence de greigite et d'oxydes de fer.

a scanning electron microscope equipped with an EDS system.

Greigite (Fe_3S_4) was also looked for using HIRM/K, where $\text{HIRM} = (\text{SIRM}_{2\text{T}} + \text{IRM}_{-0.3\text{T}})/2$ is modified from Roberts [21] in order to minimize the influence of iron oxides. In Fig. 4c, this parameter is normalized to its maximum encountered value. High values of $(\text{HIRM}/K)^*$ strongly suggest the presence of greigite. They are observed in the maximum clay zone of lithology 5, and also in lithologies 6 and 8. By contrast, the smallest values are observed in silt-enriched levels (lithologies 3 and 7), reinforcing the dominance of (titano-) magnetite in these lithologies.

4. Petrofabric data

The anisotropy of magnetic susceptibility is characterized by an ellipsoid whose principal axes are $K_1 \geq K_2 \geq K_3$ in both orientations and intensities [2, 3, 15]. For the scalar aspects of the anisotropy, the bulk anisotropy, and the planar and linear anisotropies, here noted in %, are the most classical magnetic parameters: $P = ([K_1/K_3] - 1) \times 100$, $F = ([K_2/K_3] - 1) \times 100$ and $L = ([K_1/K_2] - 1) \times 100$. In our argillites, the bulk anisotropy varies from $P = 0.3\%$ to $P = 1.5\%$ for the

carbonate-dominated lithologies (lithologies 1, 10 and part of 7), and from $P = 0.4\%$ to $P = 5\%$ for the other lithologies (Table 1). In all cases, the bulk anisotropy results mainly from the sub-horizontal bedding of the argillites, parallel to the average planar orientation of the clay mineral platelets. Accordingly, the planar anisotropy is larger in the clay-richest rocks, in the order of 0.1 to 5%, i.e. close to the bulk anisotropy values. A linear anisotropy, however, does exist within the bedding plane, with an average value of $L = 0.14\%$, reaching more than 0.3% in lithologies 3 and 7, the richest in silt (Table 1).

For the directional aspects of the anisotropy, the studied core-sections were re-oriented with respect to the magnetic North, with a precision better than $\pm 5^\circ$. For the vertical boreholes (HTM102 and MSE101), this re-orientation was performed using the low-coercivity contribution to the total remanence according to the classical palaeomagnetic techniques [4, 28]. The resulting NRM vector shows a constant inclination close to that of the present north ($\sim +65^\circ$) at the borehole site. This suggests that the NRM vector does record the present magnetic North, which was therefore used to re-orient the core-sections. For the oblique borehole (EST211), whose azimuth and inclination were measured with a great precision ($< 1^\circ$), the magnetic North was reconstructed by assuming a horizontal bedding, which is true within $\pm 3^\circ$ (ANDRA database). Bedding horizontality is also confirmed in the vertical boreholes, except for core-section T1-471 (MSE101), whose planar magnetic anisotropy dips 33° to the west (Fig. 5a), which we attribute to a local compaction structure or to a blind fault.

Systematic re-orientation of the specimens allowed us to examine the orientation of the magnetic lineation with respect to the geographical frame (Fig. 5c). The magnetic lineations are found to be remarkably constant, around north-south in azimuth, all along the whole Callovo-Oxfordian formation (Fig. 5b), except principally for lithologies 3 and 7. In the upper half-part of lithology 3, and at its very base (T1-450; Fig. 1), where $\text{NRM}^* > K^*$, the mean lineation azimuth tends to NNW-SSE (30 measurements). This contrasts with the lower half-part, silt-depleted part of lithology 3 ($\text{NRM}^* < K^*$), where these azimuths are clearly NNE-SSW (30 measurements). The same phenomenon is observed in parts of lithologies 7 to 10, and also in lithology 1, but the statistical coverage may not be sufficient here (six specimens).

The dispersion of the directional data and their means were analysed using the bootstrap technique of Constable and Tauxe [5], already applied to marine sediments for the same purpose [24]. This nu-

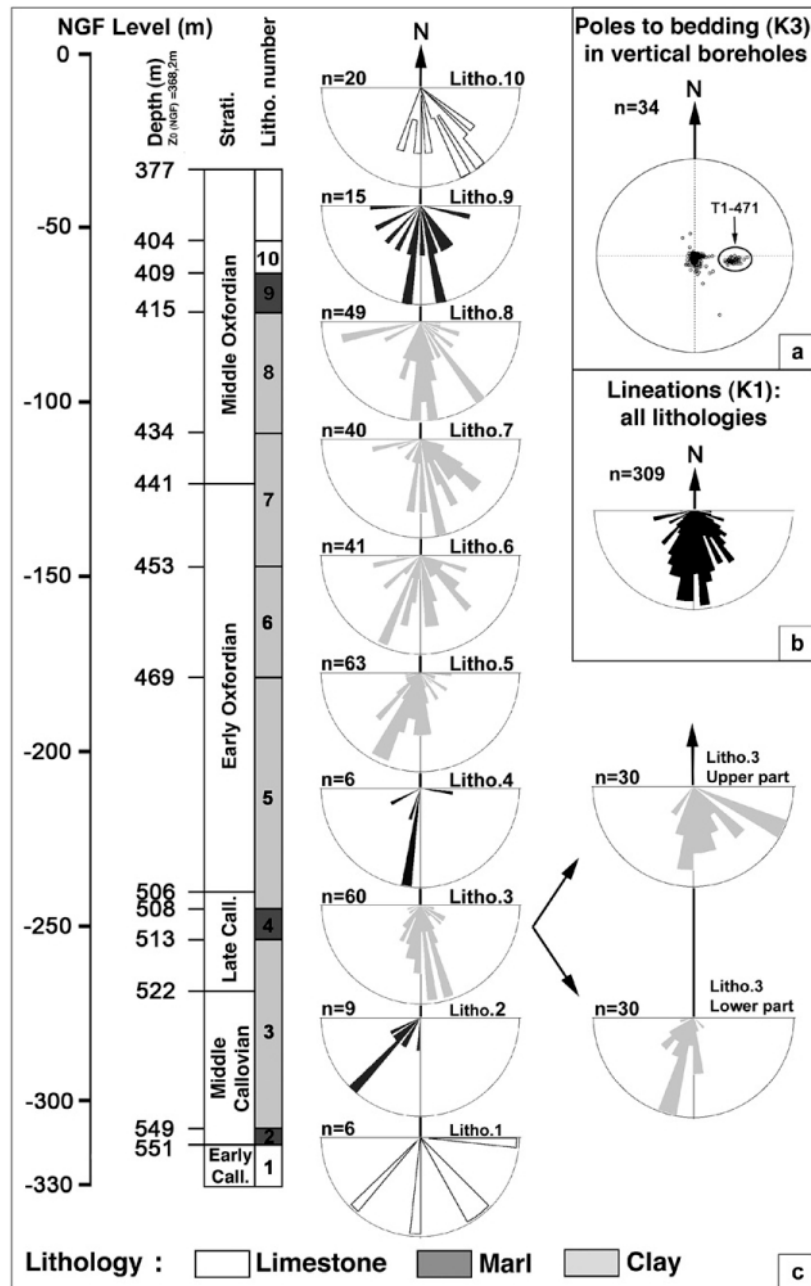


Fig. 5. Petrofabric data of the Callovo-Oxfordian argillites. (a) Orientation diagram (Schmidt, lower hemisphere) of the poles to bedding (K_3) in the vertical boreholes. Note that measurements from T1-471 give a bedding dipping 33° to the west, a structure attributed to a sealed fracture. (b) Rose diagram (in map view) of the magnetic lineations (K_1) measured in all the 10 lithologies (309 measurements). (c) Rose diagrams of the magnetic lineations for each lithology, with a complementary subdivision for lithology 3 (see text). Note: for the six, 30-cm-long core-sections from the vertical boreholes (HTM102 and MSE101), the 9 to 15 data acquired each 10 cm have been averaged; for the inclined borehole (EST 211) the 6 data acquired each 3–4 m have been averaged.

Fig. 5. Pétrofabric des argilites du Callovo-Oxfordien. (a) Diagramme d'orientation (Schmidt, hémisphère inférieure) des pôles de plan de litage (K_3) des forages verticaux. Noter que les mesures de T1-471 donnent un litage penté vers l'ouest d'environ 33° , ce que nous considérons comme étant dû à l'amortissement d'une fracture. (b) Diagramme en rose (dans le plan horizontal orienté par le nord) des linéations magnétiques (K_1) mesurées dans tous les échantillons (309 mesures). (c) Diagrammes en rose des linéations magnétiques pour chaque lithologie, avec une subdivision supplémentaire pour la lithologie 3 (voir texte). Nota : pour les six tronçons de 30 cm chacun, issus des forages verticaux (HTM102 et MSE101), on a moyenné les 9 à 15 mesures effectuées tous les 10 cm. Pour le forage incliné (EST 211), on a moyenné les six mesures effectuées chaque 3 à 4 m.

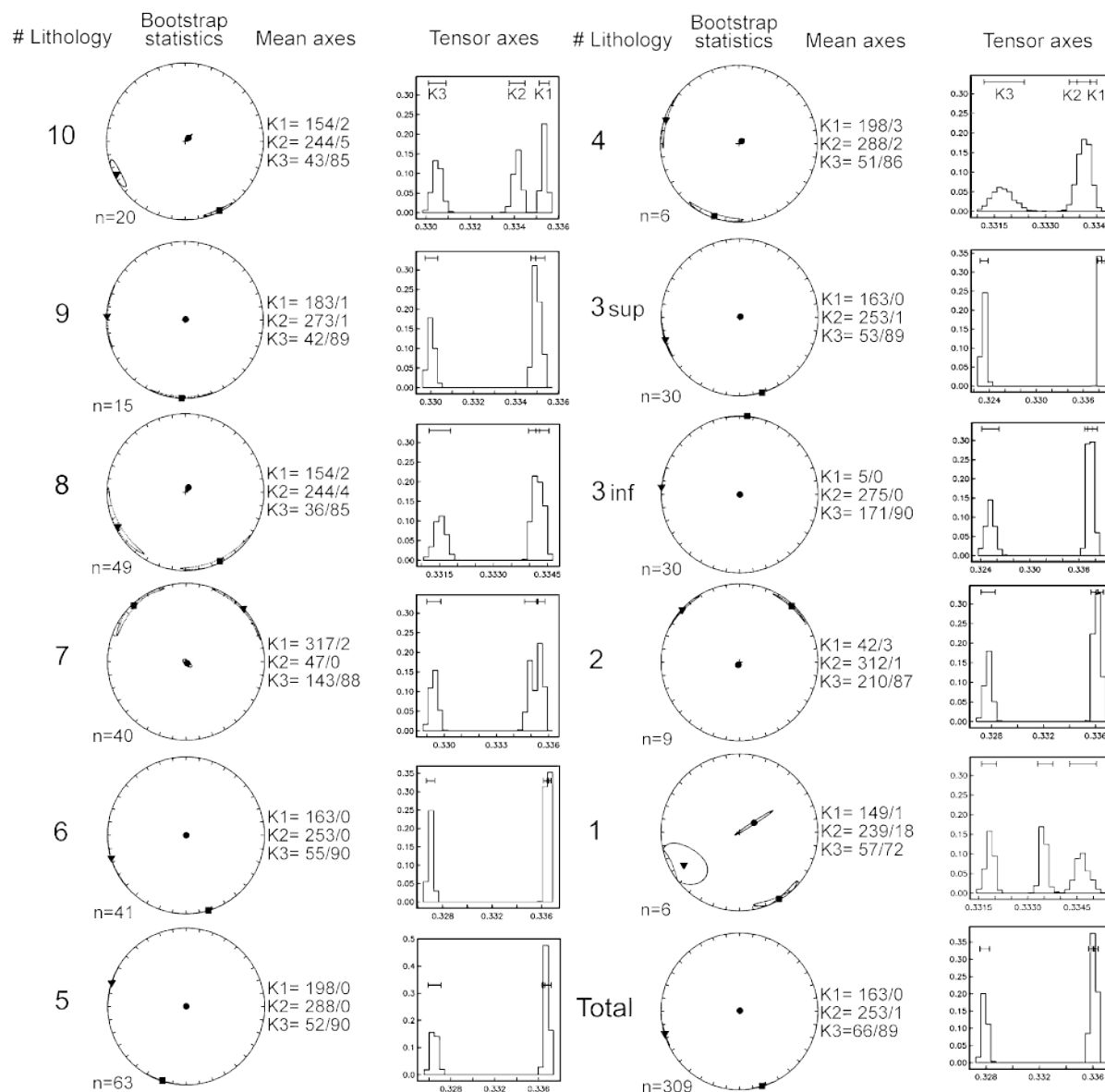


Fig. 6. AMS bootstrap statistics with mean orientation of the three main AMS axes, calculated and represented on a north-oriented diagram. Their confidence ellipses for each lithology (1 to 10) are also plotted. Histogram diagrams of each lithology are the frequencies of each one of the three main AMS tensors (i.e., AMS geometric ellipse).

Fig. 6. Statistique de *bootstrap* des mesures d'anisotropie de la susceptibilité magnétique, avec l'orientation moyenne des trois axes principaux d'ASM, calculées et représentées sur diagramme d'orientation orienté par rapport au nord pour les 10 lithologies. L'ellipse de confiance leur correspondant, pour chaque lithologie, est aussi dessinée. Les histogrammes de chaque lithologie correspondent à la fréquence des valeurs du tenseur d'ASM des trois axes principaux (géométrie de l'ellipsoïde d'ASM).

merical technique, based on a Monte-Carlo approach, repeatedly calculates the means of 'para-datasets' randomly chosen from the original dataset. Orientation diagrams showing the 'bootstrapped' means are produced, along with the 2D-dispersions of the axes of the confidence ellipses, and the frequency histograms of the 'bootstrapped' tensor axis values (Fig. 6). In the lime-

stones (lithologies 1 and 10) the NNW–SSE direction of K_1 ($\sim 160^\circ\text{N}$) has a small angular dispersion ($\pm 8^\circ$). A small angular dispersion ($\pm 10^\circ$) is also observed in lithologies 3, 5 and 6. In the other lithologies, this dispersion reaches $\pm 20^\circ$, in particular in the transitional lithologies 2, 4 and 9, enriched with carbonate. This analysis confirms that the clay- and carbonate-enriched

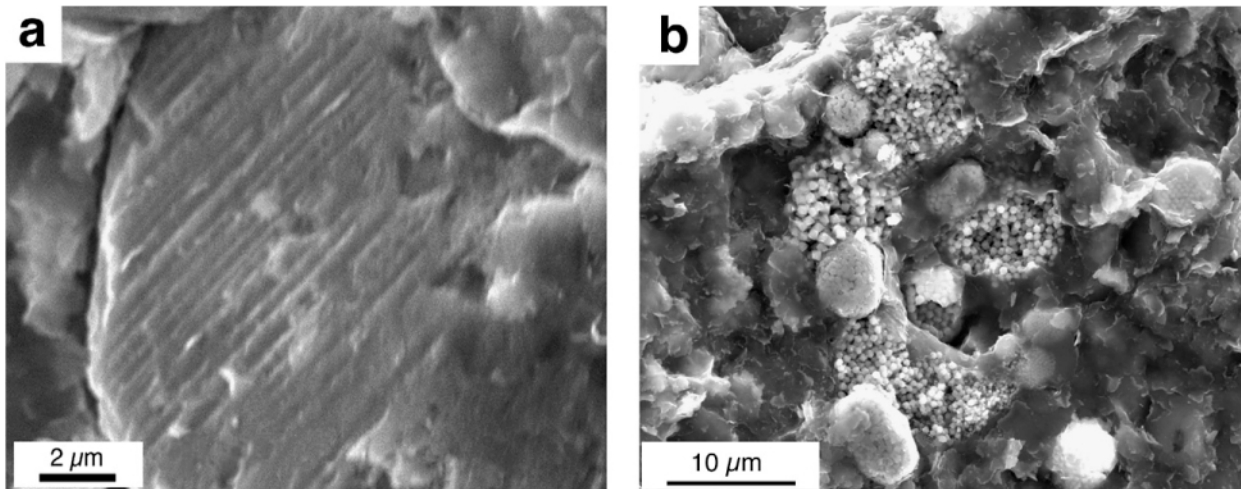


Fig. 7. Scanning electron microscope photos of iron-rich grains in the Callovo-Oxfordian argillites: (a) detrital titanomagnetite grain (EDS determination); (b) framboids made of iron-sulfide grains (pyrite and perhaps greigite).

Fig. 7. Photographies au microscope électronique à balayage de grains riches en fer dans les argilites du Callovo-Oxfordien : (a) grain de titanomagnétite (détermination par EDS); (b) framboïde composé de grains de sulfate de fer (pyrite, et peut-être greigite).

lithologies have north–south to NNE–SSW lineation trends, while the silt-enriched lithologies have NNW–SSE lineations trends. The histograms confirm that all the ellipsoids are strongly planar, the linear component being well-defined in the limestones lithologies (1 and 10) and decreasing from the silt-enriched lithologies (3-upper-half-, 7 and 8) toward the clay-enriched ones (2, 3-lower-half-, 4, 5, 6 and 9).

5. Discussion

5.1. Nature and status of the ferrimagnetic fraction

Remanent magnetization is a sensitive property since just a few ferrimagnetic grains suffice to confer a remanence to the rock. In sediments, the main carriers of ferrimagnetism at the origin of the increase in the NRM^*/K^* ratio are the iron oxides (magnetite and maghemite principally) and iron sulfides (pyrrhotite, greigite) as described by [18,22,26], but not pyrite, which is paramagnetic under laboratory conditions. In our carbon-rich sediments, where rather reducing conditions are favoured, iron oxides likely belong to the detrital fraction: thus they are preferentially ascribed to the silt fraction. Remnants of titanomagnetite have, indeed, been observed with the SEM (Fig. 6a). On the other hand, these sedimentary conditions favour the authigenic growth of sulfides, as evidenced by the abundance of pyrite framboids among which the ferrimagnetic sulfides must have developed (Fig. 6b).

In the K -versus-NRM diagrams in Fig. 2, departure from the carbonate–clay vertical axis is due to the ferrimagnetic minerals. To know whether iron oxides, sulfides or both mineral species dominate requires a close examination of the other data, principally sulfate and total iron-oxide (Fig. 3). For example, the peak values of the natural remanence, which appear at the base and the top of lithology 3, are mostly ascribed to the presence of iron oxides, since sulfate has low values, whereas total iron oxide is close to its maximum. By contrast, inside lithology 3, close to the transition between the Middle and the Late Callovian, the peak value of NRM is rather due to sulfides, as suggested by the coeval large amount of both sulfate and total iron oxides. Greigite is strongly suspected of being the ferrimagnetic iron-sulfide carrier in our sediments, as hinted by its gyroremanent behaviour and also by the HIRM/ K peak values (Fig. 4), which are preferentially associated with levels that are the richest in clay. The very low permeability of these clay-rich levels may be at the origin of the formation and/or preservation of greigite, which seems to be associated with pyrite.

5.2. Sedimentary evolution of the Callovo-Oxfordian

The simultaneous use of K and NRM (Fig. 2) helps us to understand the evolution of the sedimentary sequence throughout the Callovo-Oxfordian, since K represents mostly the amount of clay with respect to carbonate, and NRM, the amount of ferrimagnetic grains, ascribed either to the detrital fraction (iron oxides) or to

the authigenic fraction (iron sulfides). Two main evolutions can be observed in the K -versus-NRM plot. The first one, with $K > \text{NRM}$, characterizes all lithologies but 3 and 7, and corresponds, at the first order, to a mixture between clay and carbonate, to which a given amount of ferrimagnetic minerals is added. The second one, with $K < \text{NRM}$, characterizes the silt-dominated sediments, typical of lithologies 3 and 7.

Lithology 3 is a third-order sequence clearly subdivided into two episodes, separated by a change in the relative intensities of NRM^* and K^* , which takes place at about the maximum flooding stage [19]. The change in the relative values of K and NRM at constant K marks a drastic change in the sedimentary conditions, from depleted to enriched with the ferrimagnetic fraction at a rather constant clay fraction. Although the SO_4 values are rather high, the ferrimagnetic fraction is mostly attributed to silt supplies, since HIRM/K and the S-ratio (Fig. 4) call for the dominance of iron oxides in the presence of pyrite. Other discharges of this type are observed during the Oxfordian, marked by peaks of NRM values within lithologies 7 to 9, of decreasing intensities toward the carbonate platform (lithology 10).

A low flooding stage is marked by the carbonate-enriched lithology 4, where K and NRM are close to the minimum. By contrast, lithology 5, the richest in clay, corresponds to the maximum flooding surface of both second- and third-order sequences [19], including the maximum recorded K values of the formation, also called the maximum clay zone. This flooding is followed by a continuous decrease in susceptibility, remanence, sulfate, and iron contents, hence in clay and silt (at the exception of short discharges in silt, as noted above), the sediment being progressively enriched with carbonate up to the carbonate platform of the Oxfordian.

5.3. Message from the petrofabrics

The lattice and/or shape preferred orientation of the magnetic minerals, namely the clay minerals plus a few detrital silicates and the ferrimagnetic grains, is studied through their anisotropy of magnetic susceptibility at low field. We have seen (Section 5.1) that the paramagnetic clay fraction dominates the magnetic signal. However, at places where the NRM has high values, the ferrimagnetic fraction may play a significant role in the anisotropy signal. The planar magnetic anisotropy hence reflects mostly the strong planar organization of the clay minerals. The linear anisotropy is modest in intensity over the whole formation, from a few percent to exceptionally one third of the total anisotropy. It provides information on the preferred zone-axis disposition

of the clay platelets, i.e. on the preferred axis around which these platelets rotate, or on the preferred alignment of the ferrimagnetic grains in case of high NRM values.

The planar anisotropy likely originates from the sedimentation of the clay minerals, i.e. deposition plus compaction. The origin of the linear anisotropy is not straightforward to interpret. It may represent the shear direction that the sediment underwent during or after compaction towards the basin depocentre. It may also relate to the regional stress regime at a given time. However, the sediment does not appear to have suffered any plastic deformation, as strongly suggested by numerous observations of intact sedimentary microstructures.

Our favoured interpretation is that the linear anisotropy provides information on the direction of the currents that were active during sedimentation [11,12,16]. Linear anisotropy directions that would indicate a flow perpendicular to these directions are discarded, since the very small linear anisotropy magnitudes ($\ll 1\%$) exclude the possibility of vortices that characterize turbulent flow regimes [17,27]. Hence, we postulate that the linear anisotropy indeed represents the flow direction of the currents. Note however that we have no marker giving the sense of this flow. These directions are mostly trending about north–south over the whole Callovo-Oxfordian (Fig. 5b), in agreement with palaeogeographical reconstructions in which the Rhineland and Bohemian areas, respectively to the north and the northeast of the study area, are considered as source regions for the sediments [19,20]. This interpretation is strengthened by noting that the upper half-part of lithology 3 (Table 1: 513–533 m) and lithology 7, where NRM values already attributed to iron oxides are maximum, have also the highest linear anisotropies, a character that we easily explain as due to grains aligned within micro-channels of the sediment. These grain alignments were probably parallel to currents coming from either the southeast (Subalpine massifs) or the northwest (London–Brabant massif). Following Pellenard [3], the latter origin for the silt fraction is preferred, in accordance with the northerly source regions of the clay minerals.

6. Conclusion

In this study, the magnetic properties (susceptibility, remanence and some derived parameters) associated with sulfate, carbonate and iron contents are used as indicators of mineral natures and supplies in the sediment. They help to clarify the main characters of the Callovo-Oxfordian lithologies. A change in the sedimentary con-

ditions during the end of the Callovian, as well silt-enriched discharges decreasing in intensity during the Oxfordian, are revealed by the relation $\text{NRM}^* > K^*$. The anisotropy of magnetic susceptibility data reveals that constant approximately north–south lineation directions prevailed over almost the whole formation. They are interpreted as parallel to palaeocurrents originating from the Rhineland, Bohemian and London–Brabant massifs, the latter region being the preferential provider of the silt-enriched fractions.

Acknowledgements

L.E. thanks GdR FORPRO (CNRS) for financial support, and ANDRA for his PhD fellowship at the University of Toulouse (France), LMTG (UMR CNRS #5563). Roberto Siqueira is warmly thanked for his constant support at the magnetic laboratory of the LMTG. We also thank Dennis Lahondes, Claude Aurière, and Hervé Rebours for providing the samples from the core storage (ANDRA laboratory). This work is the GdR FORPRO contribution # 2005/01 A.

References

- [1] J. Bloemendal, J.W. King, F.R. Hall, S.J. Doh, Rock magnetism of Late Neogene and Pleistocene deep-sea sediments: relationship to sediment source, diagenetic processes and sediment lithology, *J. Geophys. Res.* 97 (b4) (1992) 4361–4375.
- [2] G.J. Borradaile, B. Henry, Tectonic applications of magnetic susceptibility and its anisotropy, *Earth Sci. Rev.* 42 (1997) 49–93.
- [3] J.-L. Bouchez, Magnetic susceptibility anisotropy and fabrics in granites, *C. R. Acad. Sci. Paris, Ser. IIa* 330 (1) (2000) 1–14.
- [4] R.F. Butler, *Paleomagnetism: Magnetic Domains to Geologic Terranes*, Electronic Edition, Department of Geosciences, University of Arizona, Tucson, AZ, 2004 (238 p.).
- [5] C.G. Constable, L. Tauxe, The bootstrap for magnetic susceptibility tensors, *J. Geophys. Res.* 95 (1990) 8383–8395.
- [6] M.J. Dekkers, Magnetic properties of natural pyrrhotite. Part I: Behavior of initial susceptibility and saturation-magnetization-related rock-magnetic parameters in a grain-size dependant framework, *Phys. Earth Planet. Inter.* 52 (1988) 376–393.
- [7] M.J. Dekkers, Magnetic properties of natural pyrrhotite. II. High- and low-temperature behavior of J_{rs} and TRM as function of grain size, *Phys. Earth Planet. Inter.* 57 (1989) 266–283.
- [8] F. Demory, H. Oberhänsli, N.R. Nowaczyk, M. Gottschalk, R. Wirth, R. Naumann, Detrital input and early diagenesis in sediments from Lake Baikal revealed by rock magnetism, *Global Planet. Change* 46 (2005) 145–166.
- [9] J. Dercourt, L.P. Zonenshain, L.E. Ricou, V.G. Kazmin, X. Le Pichon, A.L. Knipper, et al., Présentation des 9 cartes paléogéographiques au 1/20 000 000 s'étendant de l'Atlantique au Pamir pour la période du Lias à l'Actuel, *Bull. Soc. géol. France* 8 (1985) 637–652.
- [10] D.J. Dunlop, Ö. Özdemir, *Rock Magnetism: Fundamentals and Frontiers*, Cambridge University Press, 1997 (573 p.).
- [11] B.B. Ellwood, M.T. Ledbetter, Paleocurrent indicators in deep-sea sediment, *Science* 203 (1979) 1335–1337.
- [12] B.B. Ellwood, Application of the anisotropy of magnetic susceptibility method as an indicator of bottom-water flow direction, *Mar. Geol.* 38 (1980) 83–90.
- [13] E. Gaucher, C. Robelin, J.-M. Matray, G. Négrel, Y. Gros, J.-F. Heitz, A. Vinsot, H. Rebours, A. Cassagnabère, A. Bouchet, ANDRA underground research laboratory: interpretation of the mineralogical and geochemical data acquired in the Callovo-Oxfordian formation by investigative drilling, *Phys. Chem. Earth* 29 (2004) 55–77.
- [14] C.S. Horg, J.C. Chen, T.Q. Lee, Variations in magnetic minerals from two Plio-Pleistocene marine-deposited sections, southwestern Taiwan, *J. Geol. Soc. China* 35 (1992) 323–335.
- [15] F. Hrouda, Magnetic anisotropy of rocks and its application in geology and geophysics, *Geophys. Surv.* 5 (1982) 37–82.
- [16] G. Ising, On the magnetic properties of varved clay, *Arkiv Mat. Astron. och Fysik* 29 (1943) 1–37.
- [17] C. Kissel, C. Laj, B. Lehman, L. Labeyrie, V. Bout-Roumazeilles, Changes in the strength of the Iceland-Scotland overflow water in the last 200 000 years: evidence from magnetic anisotropy analysis of core SU90-33, *Earth Planet. Sci. Lett.* 152 (1997) 25–36.
- [18] H.F. Passier, M.J. Dekkers, G.J. de Lange, Sediment chemistry and magnetic properties in an anomalously reducing core from the eastern Mediterranean Sea, *Chem. Geol.* 152 (3–4) (1998) 287–306.
- [19] P. Pellenard, Messages terrigènes et influences volcaniques au Callovo-Oxfordien dans les bassins de Paris et du Sud-Est de la France, PhD thesis, Lille University, Soc. géol. du Nord, n°31, 2003 (361 p.).
- [20] P. Pellenard, J.-F. Deconinck, D. Marchand, J. Thierry, D. Fortwengler, G. Vigneron, Contrôle géodynamique de la sédimentation argileuse du Callovo-Oxfordien moyen dans l'Est du bassin de Paris: influence eustatique et volcanique, *C. R. Acad. Sci. Paris, Ser. IIa* 328 (1999) 807–813.
- [21] A.P. Roberts, R. Weaver, Multiple mechanisms of remagnetization involving sedimentary greigite (Fe_3S_4), *Earth Planet. Sci. Lett.* 231 (3–4) (2005) 263–277.
- [22] A.P. Roberts, Magnetic properties of sedimentary greigite (Fe_3S_4), *Earth Planet. Sci. Lett.* 134 (1995) 227–236.
- [23] A.P. Roberts, G.M. Turner, Diagenetic formation of ferrimagnetic iron sulphide minerals in rapidly deposited marine sediments: South Island, New Zealand, *Earth Planet. Sci. Lett.* 115 (1993) 257–273.
- [24] K. Schwehr, L. Tauxe, Characterization of soft-sediment deformation: detection of cryptoslumps using magnetic methods, *Geol. Soc. Am.* 31 (3) (2003) 203–206.
- [25] I.F. Snowball, Gyroremanent magnetization and the magnetic properties of greigite-bearing clays in southern Sweden, *Geophys. J. Int.* 129 (1997) 624–636.
- [26] C. Strechie, F. André, A. Jelinowska, P. Tucholka, F. Guichard, G. Lericolais, N. Panin, Magnetic minerals as indicators of major environmental change in Holocene Black Sea sediments: preliminary results, *Phys. Chem. Earth* 27 (2002) 1363–1370.
- [27] D.H. Tarling, F. Hrouda, *The Magnetic Anisotropy of Rocks*, Chapman & Hall, London, 1993.
- [28] L. Tauxe, Sedimentary records of relative paleointensity: theory and practice, *Rev. Geophys.* 31 (1993) 319–354.
- [29] J.D.A. Zijdeveld, AC-Demagnetization of rocks: analysis of results, in: D.W. Collinson, et al. (Eds.), *Methods in Palaeomagnetism*, Elsevier, Amsterdam, 1967, pp. 254–286.

4.5.3.2. Anisotropie des grains ferrimagnétiques

L'anisotropie de l'aimantation rémanente anhystérétique (AARA) a été mesurée dans les principales fenêtres de champ appliqué, caractérisées par les analyses des spectres de coercivité et de l'ARI. Chaque échantillon étudié a été aimanté (dans la fenêtre choisie) dans 10 directions distinctes, pour reconstruire un "pseudo-tenseur" soulignant l'organisation des grains ferrimagnétiques sensibles aux fenêtres de champ appliqué, et réorienté par rapport au Nord en appliquant la même technique de ré-orientation que pour l'ASM (§ 4.4.3). Ces mesures ont été appliquées sur des échantillons de la lithologie argileuse (07822-B3; lithologie 5), des lithologies plus riche en grains ferrimagnétiques (15641-A3; lithologie 3, partie supérieure) et moins riche en grains ferrimagnétiques (15665-B3; lithologie 3, partie inférieure), et enfin dans le niveau de transition entre deux lithologies (15783-A3; passage de la lithologie 2 à 3) (Fig. IV.35a).

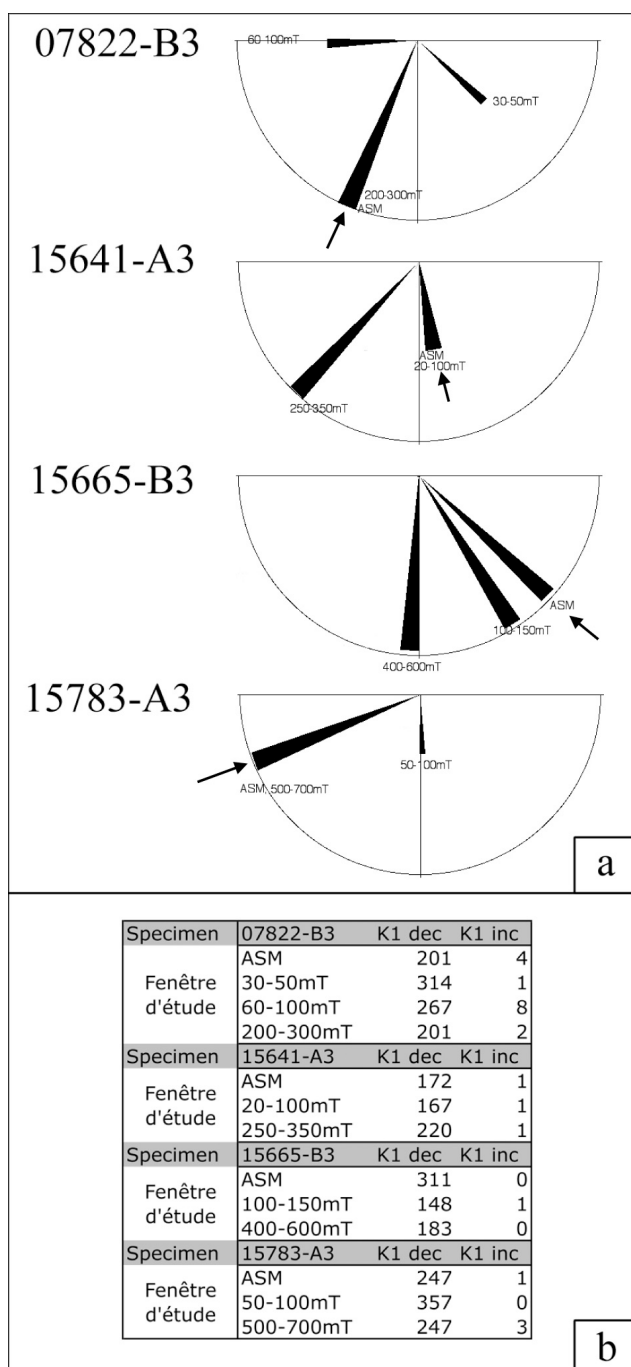


Figure IV.35: Diagrammes d'orientation des grains ferrimagnétiques dans différentes fenêtres de coercivité comparé à celle de l'ASM (flèche). (a) Orientation (par rapport au Nord) des grains ferrimagnétiques pour le niveau argileux (07822-B3), pour le niveau plus riche (15641-A3) et moins riche en grains ferrimagnétiques (15665-B3) de la lithologie 3, et enfin pour le niveau de transition entre les lithologies 2 et 3 (15783-A3); (b) Tableau des orientations de l'axe K1 des échantillons mesurés pour leur AARA en fonction des fenêtres de coercivité appliquées.

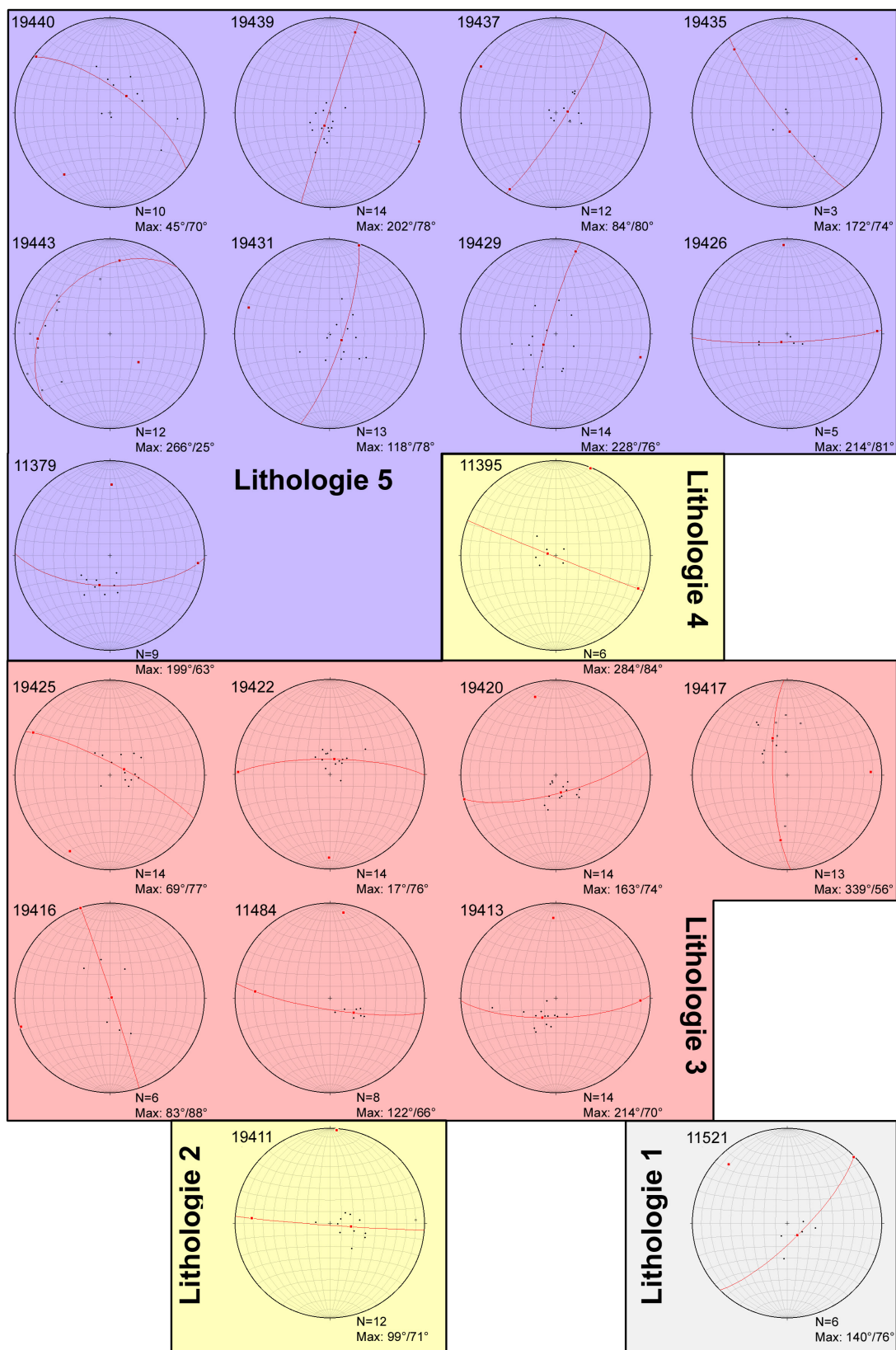


Figure IV.36: Diagrammes d'orientation des vecteurs de l'ARN pour chaque tronçon du forage EST342, classé par lithologie. N représente le nombre d'échantillons dans le tronçon et Max représente l'orientation de la moyenne vectorielle des ARN du tronçon.

4 – Apports du magnétisme dans les argilites

# Lithologie	Nom	Z	Moy ARN	Moy fréquence	Moy Vectorielle
5	19440-B1	590,2	248	255	45
	19439-B3	593,44	?	180	202
	19437-A1	595,94	178	185	84
	19435-B1	600,39	239	240	172
	19433-B3	603,1	213	230	266
	19431-A1	606,37	134	130	118
	19429-B7	608,4	151	155	228
	19426-A2	611,17	200	200	214
	11379-B1	614,8	201	210	199
4	11395-A1	618,73	124	135	284
3	19425-A7	621,26	191	190	69
	19422-A1	624,18	95	100	17
	19420-A5	627,1	134	140	163
	19417-B3	630,03	214	220	339
	19416-A1	633,48	116	125	83
	11484-B2	636,5	95	100	122
	19413-B4	639,67	128	130	214
2	19411-A1	642,11	125	135	99
1	11521-B1	645,74	105	180	140

Tableau IV.8: Données analysées pour la ré-orientation (par rapport au Nord) des échantillons de EST342. “Moy ARN” représente la moyenne arithmétique des déclinaisons des vecteurs ARN avant ré-orientation par tronçon; “Moy fréquence” est la distribution moyenne des déclinaisons des vecteurs ARN dans un tronçon et “Moy vectorielle” est la déclinaison moyenne vectorielle des vecteurs ARN par tronçon.

On peut noter, dans deux niveaux particuliers, que les vecteurs ARN ont des inclinaisons négatives (Fig. IV.37). Un des niveaux est situé exactement au centre de la lithologie 3 et l'autre au maximum d'argilosité de la lithologie 5.

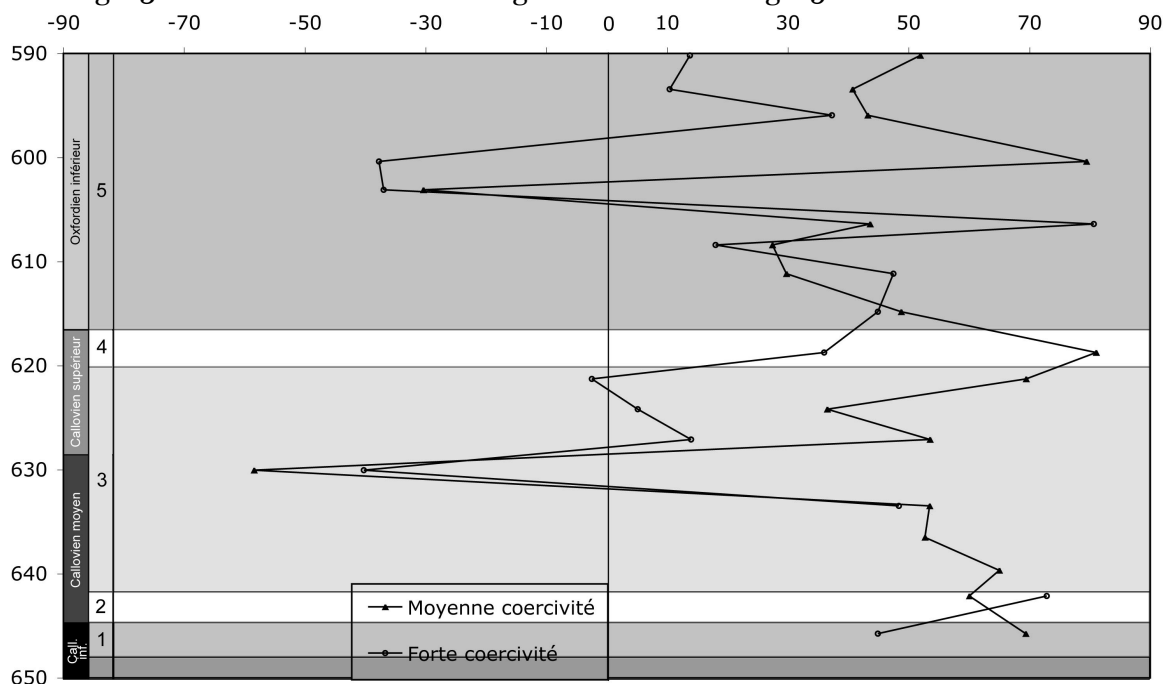


Figure IV.37: Inclinaison des vecteurs rémanents naturels pour moyenne et forte coercivités, le long du forage EST342.

L'inversion enregistrée par la lithologie 3 (Fig. IV.37) est placée dans un niveau à gros grains (difficilement capable d'enregistrer des champs magnétiques anciens) et localisée à la transition entre le niveau argilo-silteux de fin du Callovien moyen et le niveau argilo-carbonaté du début du Callovien supérieur. On peut noter qu'elle correspond exactement à un grand pic en intensité de l'ARN (Fig. IV.31) et à la présence d'une famille de haute coercivité (Fig. IV.34). Cette inversion est peut-être donc réelle, et enregistrée dans ce niveau.

La seconde inversion, située dans un niveau à petits grains de la lithologie 5 (maximum d'argilosité) et à forte coercivité semble toutefois reliée à la présence de greigite. La gyrorémanence de la greigite perturbe les orientations réelles des vecteurs rémanents. Cette inversion est donc moins plausible; mais la question reste ouverte.

4.5.4.2. Résultats de l'ASM

Après ré-orientation, les mesures d'ASM montrent une parfaite foliation horizontale (Tableau IV.9). La linéation (K1) est ré-orientée à la fois par le vecteur ARN et par le vecteur de moyenne coercivité, les deux méthodes de ré-orientation montrant des valeurs quasi-identiques.

Les orientations moyennes de K1 par tronçon sont replacées dans un diagramme où les azimuths sont étalés en abscisse entre 270° à gauche et 90° à droite représentant respectivement, les quadrants Sud-Ouest (SO) et Sud-Est (SE) d'une boussole (Fig. IV.38). Cette représentation suffit puisque l'on ne connaît pas le sens mais uniquement la direction de K1. Les orientations du cadran SE sont colorées en rouge et celles du cadran SO colorées en bleue, pour faciliter l'interprétation. Sur l'ensemble du forage EST342, on retrouve ce qui avait été remarqué dans le forage EST211, où les argiles de la lithologie 5 ont une orientation dominante selon NE-SO (Fig. IV.38). Le niveau plus silteux présente exceptionnellement une direction NO-SE. La direction NE-SO de sa partie centrale correspond à l'inversion de l'inclinaison de vecteur rémanent; la ré-orientation de l'ASM dans ce niveau n'est donc pas optimale. On retrouve aussi le même "problème" d'inversion de l'inclinaison du vecteur rémanent au maximum d'argilosité de la lithologie 5. On peut donc conclure qu'il y a une réelle corrélation entre l'origine des silts et la direction NO-SE d'une part, et l'origine des argiles avec la direction NE-SO d'autre part. Ces différentes minéralogies ont donc clairement des sources d'apport différentes.

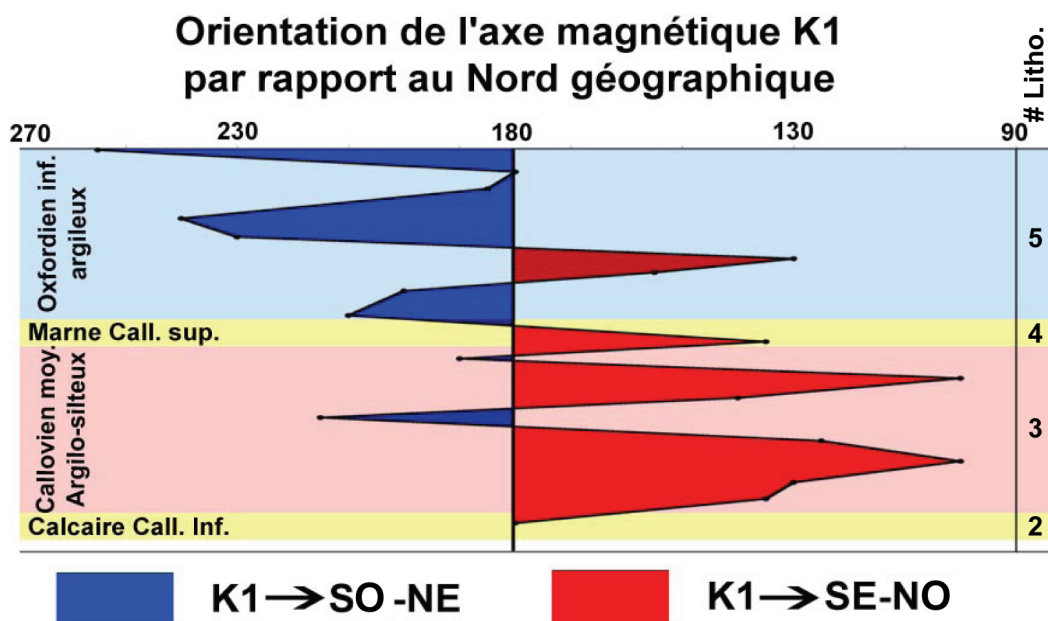


Figure IV.38: Diagramme des orientations de K1 le long du forage EST342, par rapport au nord.

En conclusion, après étude de la minéralogie magnétique et de son organisation dans les argilites, le Callovien et l'Oxfordien, bien que parfaitement identiques à l'oeil, montrent des différences très nettes, en particulier en ce que nous interprétons comme des directions des sources d'apports de sédiment.

Sur l'ensemble de la formation, la foliation magnétique est horizontale avec un taux d'anisotropie planaire allant de 0,02% à 5%, et la linéation magnétique, bien que peu prononcée (~qq ‰), est stable d'une lithologie à l'autre. En comparant les directions de linéation (K1) avec les paramètres magnétiques, on constate que les zones du Callovien (moyen en particulier), riches en grains silteux ($NRM^* > K^*$; rapport-S élevé; HIRM/K faible et ARAs/ARIs élevé), ont des orientations Nord-Ouest/Sud-Est alors que les zones moins riches en grains ferrimagnétiques (Oxfordien inférieur en particulier) et riches en argiles ont des directions Nord-Nord-Est/Sud-Sud-Ouest. On constate par ailleurs que la direction Nord-Ouest/Sud-Est dans le forage EST342 est présente pendant tout le Callovien (lithologie 3) alors que cette direction n'apparaît seulement qu'à partir du Callovien moyen dans le forage EST211 (moitié sup. de la lithologie 3; Callovien moyen) soulignant une origine de cette linéation à caractère local plutôt que régional. Il reste à voir si ces différences de direction et de nature des apports sédimentaires ont une signification locale ou régionale réelle. On peut tenter d'y apporter une réponse au travers de l'étude de la porosité, de sa géométrie et de l'anisotropie de sa géométrie (Chapitre 5).

Chapitre 5

A p p o r t s de la pétrophysique dans les argilites



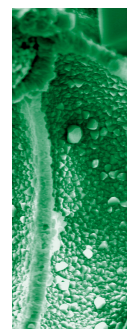
Chapitre 5 – apports de la pétrophysique dans les argilites du Callovo-Oxfordien

Dans ce chapitre, on se propose de tenter de construire un, ou plusieurs, modèle(s) structuraux des argilites pour expliquer les porosités, anisotropies, géométries des pores, mesurées dans les différents types de lithologie rencontrés le long de la formation du Callovo-Oxfordien. On utilise principalement la technique d'injection mercure dans cette étude, couplée aux données minéralogiques et aux anisotropies magnétiques. Ces données vont nous renseigner sur le mode de dépôt des sédiments et son évolution dans la formation pour, in fine, tenter d'expliquer la dynamique sédimentaire du site. Ces aspects devraient être utiles pour contraindre les paramètres thermo-hydro-mécaniques des simulations du comportement de la formation à long terme. La modélisation de la perméabilité, difficilement, voire impossible à mesurer de façon précise et répétitive, sera approchée via le dernier logiciel Pore-Cor, encore en cours de développement par des équipes internationales sous la direction de Peter Matthews (Plymouth, UK).

5.1 Techniques et méthodes en porosité et géométrie du réseau poreux

5.1.1 Principes de la porosité dans les matériaux

La porosité correspond à la quantité de vide ou espace entre les phases solides de la roche. D'un point de vue général, une roche naturelle se traduit par un milieu triphasique (Fig. V.1) constitué d'une phase solide (les minéraux), d'une phase liquide (l'eau sous ses divers états dans la roche, voir chap. II.2.3.4) et d'une phase gazeuse. Mesurer la porosité revient à décrire ces trois phases et leurs proportions relatives. Ces données sont déjà évaluées par plusieurs laboratoires avec les méthodes diagraphiques à neutron et à résonance magnétique nucléaire dans les forages et par porosimétrie mercure, pétrole, hélium, pycnométrie, autoradiographie, et adsorption à l'azote et vapeur d'eau en laboratoire (voir Chap. II.2.3.3). Il ressort que seul 4 % de l'eau dans les argilites du Callovo-Oxfordien est adsorbée par la microporosité et 10 % de l'eau qui peut circuler se trouve dans la macroporosité. Les 86% d'eau restant se trouve principalement dans la mesoporosité, dans les zones interfoliaires des argiles (voir chap. II.2.3.4). La phase gazeuse est très peu présente et donc négligable, d'autant plus que le dégazage sous vide est appliqué avant chaque injection au mercure (voir § 5.1.5) et permet d'extraire 90% de ce gaz. L'eau doit influencer légèrement les mesures d'injection au mercure mais de façon négligeable dans les argilites. Un chauffage modéré peut enlever plus de 90% de l'eau contenue dans les roches mais nous nous refusons à chauffer les argilites car les transformations minéralogiques et structurales dans ce type de roche sont trop importantes. Ces aspects sont d'ailleurs en cours d'étude pour comprendre les mécanismes de transformations minéralogiques et structurales sous stress thermique (Aubourg et al., 2005).



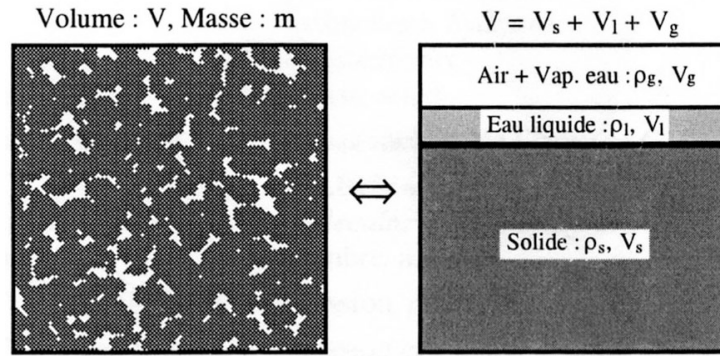


Figure V.1: Schématisation de l'état hydrique d'un matériau poreux.

La technique d'injection de mercure a été utilisée pour la première fois par Smetana (1842 in Van Brakel, 1975) pour analyser le réseau poreux dans le bois. Cette technique a ensuite été utilisée par Walschburn en 1921 (a et b), son utilisation pour l'étude des matériaux a réellement débutée à partir de 1945, puis les techniques se sont développées à partir de 1960 (in Modry, 1981).

La porosité peut se décomposer en deux parties: la porosité connectée, accessible par des chemins plus ou moins sinueux et de tailles variables; et la porosité non connectée ou fermée qui correspond à des vides ou pores isolés (Fig. V.2).

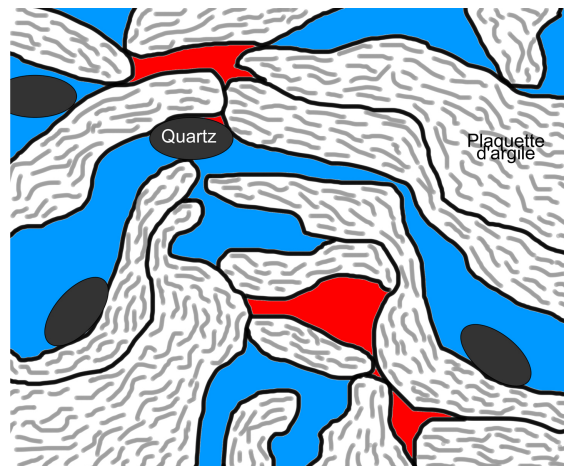


Figure V.2: Schématisation de la porosité dans un matériau argileux où la porosité connectée est en bleue et la porosité non connectée en rouge.

Les mesures par saturation permettent donc d'accéder à la porosité connectée. Le volume de fluide injecté correspond au volume des vides connectés accessibles à partir de la paroi de l'échantillon. Cette porosité totale est classiquement définie par:

$$\varepsilon = \frac{\text{Volume fluide injecté}}{\text{Volume apparent}}$$

5.1.2. L'angle de contact γ et la surface de tension σ

5.1.2.1. Définition

Cette technique d'injection au mercure est assez classiquement utilisée pour analyser la porosité connectée de différents matériaux (Day et al., 1994). Le mercure est un liquide non mouillant qui ne pénètre dans un capillaire ou un espace poreux, que si une pression est appliquée. La mouillabilité d'un liquide est la capacité du liquide à s'étaler sur une surface plane. Lorsqu'une goutte de liquide est en contact avec une surface solide, il se forme un ménisque dont la configuration finale permet l'équilibre des forces ayant pour origine les tensions superficielles σ_{sg} , σ_{sl} et σ_{lg} existant aux différentes interfaces (Fig. V.3) et qui conditionnent la forme de ces interfaces. L'équilibre de ces forces sur une surface horizontale se traduit par l'équation de Young:

$$\sigma_{lg} \cos \theta = \sigma_{sg} + \sigma_{sl}$$

où θ est l'angle de contact caractérisant le degré de mouillabilité du liquide par rapport au couple liquide/gaz considéré. Ainsi, si $\theta \leq 90^\circ$, le liquide est mouillant et $\theta \geq 90^\circ$ non mouillant dont quelques exemples sont donnés dans le tableau V.1. Orr and Dalla Valle (1959) ont mesuré des angles de contact pour différents solides, compris entre 112° et 142° avec un maximum compris entre $130-140^\circ$.

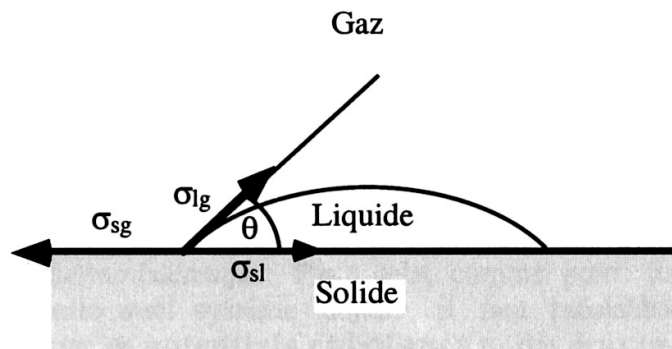
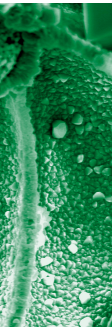


Figure V.3: Schématisation des tensions de surface (σ) entre différentes interfaces gaz-liquide-solide formant un angle de contact (θ).

Interface	σ (N/m)	θ ($^\circ$)
air-eau	0,072	0
huile-eau	0,048	30
air-huile	0,024	0
air-mercure	0,48	140

Tableau V.1: Exemples de tension de surface (σ) et d'angle de contact ou de mouillage (θ) de différents types d'interface.



5.1.2.2. Variabilité de γ et σ

Les phénomènes d'hystérésis entre les courbes d'injection et de retrait peuvent être expliqués par des variations d'angle de contact (140° à 100° pour le mercure par exemple) lors des avancées et des retraits de liquide pendant les phases de saturation et de désaturation d'une part, et d'autre part par la pollution du mercure. Dans ce cas, l'angle de contact peut atteindre des valeurs inférieures à 90° , lors de formation d'amalgame (Lowell and Shields, 1981).

Des interactions entre les interfaces solide-gaz-liquide peuvent se produire selon la nature et la texture de ces interfaces (Wenzel, 1936, 1949; Johnson and Dettre, 1969; Eick et al., 1975) modifiant l'angle de contact du liquide (Good and Mikhail, 1981). Ces mesures sont confirmées par des modèles théoriques (Cassie and Baxter, 1944; Shuttleworth and Bailey, 1948; Rootare and Prenzlou, 1967).

La valeur de l'angle de contact classiquement utilisé pour le mercure est de 140° et celle de la tension de surface σ est de 480 ± 5 mN/m, ce qui entraîne une erreur de 1% (négligeable) sur la valeur calculée des seuils. Kemball and Rideal (1946; 1947) mesurent des variations des angles de contact de 135° à 138° à l'avancée du mercure et de $119,5^\circ$ à 121° lors le retrait pour des variations de l'humidité comprise entre 20% et 100%. La tension de surface peut-être influencée par la présence d'impureté solide, d'impureté gazeuse dessorbée du solide (Good and Mickail, 1981) et par des effets de dépression de la tension de surface dans les très petits pores (Tolman, 1949).

5.1.3. Relation pression d'injection et seuil d'accès

L'équation de Laplace modifiée par Whalshburn permet de relier la pression appliquée P sur le mercure et le rayon r des capillaires dans le cas de modèles cylindriques ou l'espacement, d , entre deux parois pour les modèles de fissure ou minéraux en plaquette (Lenormand and Zarcone., 1988):

$$r = \frac{d}{2} = \frac{2\gamma \cos \theta}{P}$$

Lorsque la pression appliquée sur le mercure augmente, le mercure envahit progressivement des pores de plus en plus petits et permet d'obtenir la distribution des diamètres de pores de la roche. Il existe une littérature abondante sur cette technique (Scheidegger, 1963; Dullien, 1981; Klute and Diksen, 1986...). Si la pression est suffisamment importante, le réseau poreux peut-être considéré comme complètement saturé (Aharonov et al., 1997). Dans la gamme de pression appliquée au laboratoire de Strasbourg, la taille minimale des pores saturés atteinte est de 6 nm. Elle ne permet pas de saturer un réseau plus fin ou en effet des pores inférieurs à 6 nm existent et peuvent être infranométriques. Lorsque la pression diminue, le mercure quitte le réseau poreux progressivement, des pores les plus petits vers les pores les plus gros.

Le remplacement d'un fluide mouillant (vapeur de mercure) par un fluide non mouillant (mercure liquide) correspond à un processus appelé drainage. Le processus inverse appelé imbibition est observé lors des phases de retrait du mercure (Pickell et al., 1966). Suivant les recommandations de Pickell et al. (1966), les termes d'injection (injection en anglais) et retrait (withdrawal en anglais) seront utilisés comme analogues de drainage et imbibition.

La mesure de porosité devrait donc fluctuer selon la nature de la lithologie étudiée. Ces aspects ont été plus ou moins révélés lors des campagnes de mesures ERM-Andra (voir Chap. II.2.3.3). Les mesures d'injection-retrait permettent de venir enrichir la vision structurale de ces argilites encore floues, en évaluant la quantité de pores laissant circuler les liquides, de ceux qui piègent, par leur géométrie, ces fluides (Pickell et al., 1966; Wardlaw and Taylor, 1976; Day et al., 1994). Un modèle simplifié est proposé par l'équipe du laboratoire ERM en 2001 (Fig. V.4).

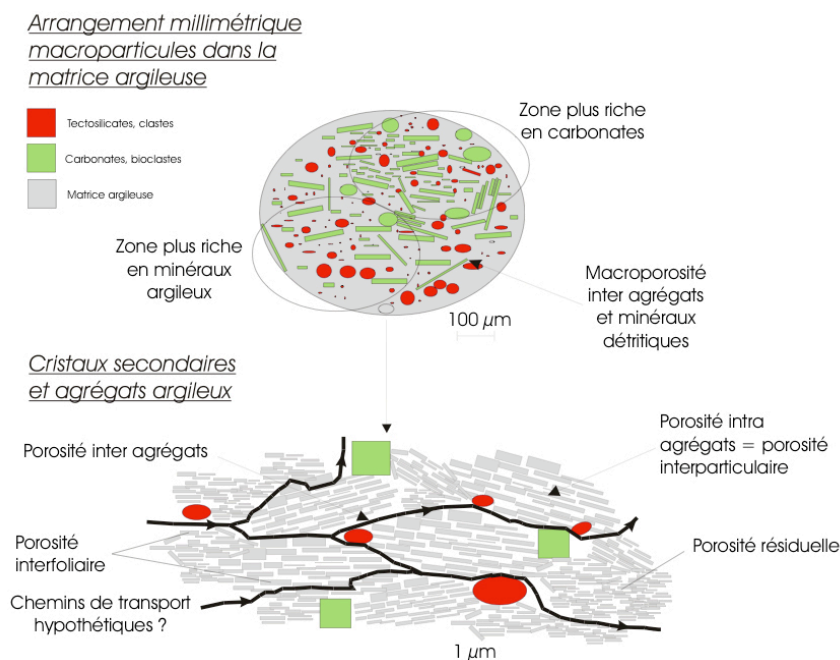
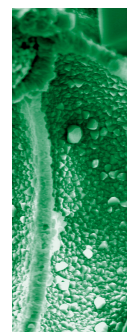


Figure V.4: Schématisation d'un modèle de porosité dans les argilites de Bure d'après les données bibliographiques et les mesures de porosité sans tenir compte des effets de doubles couches électriques de l'eau au contact des minéraux argileux (ERM, 2001).

Différents modèles de réseau sont proposés, certains relient les paramètres géométriques aux fonctions de réactions et de transport (Northon et Knapp, 1977; Aharonov et al., 1996). Les vides de tailles les plus gros servent au transport (et sert au modèle de percolation de Katz et Thompson, 1987), les plus petits servent aux interactions chimiques. Ces modèles ne sont pas adaptés pour les roches de type argiles car ils sont de deux ordres de magnitude plus forte que les mesures. Le modèle d'association euclidienne et fractale qui associe à la fois une porosité de réaction et de transports permet alors de travailler sur des roches de très faible perméabilité comme les argiles. Géraud et al. (2003) présentent un modèle d'organisation de la porosité des argilites basé sur deux fonctions principales d'un milieu poreux : le transport et la réactivité fluide-roche. Ce modèle est élaboré à partir du piégeage du mercure lors de l'essai d'injection / retrait (Katz et Thompson, 1987) et d'une conception de réseau où dans le même pore, on distingue la porosité euclidienne (volume utilisé pour le transport) et la porosité fractale (volume utilisé pour les échanges eau/roche) (Meng and Sveinsdottir, 1997). Ces auteurs définissent ces porosités à partir d'images réalisées sur des sections imprégnées par une résine colorée (Fig. V.5). La dimension fractale est déterminée grâce à l'application de filtres pour faire varier la résolution.



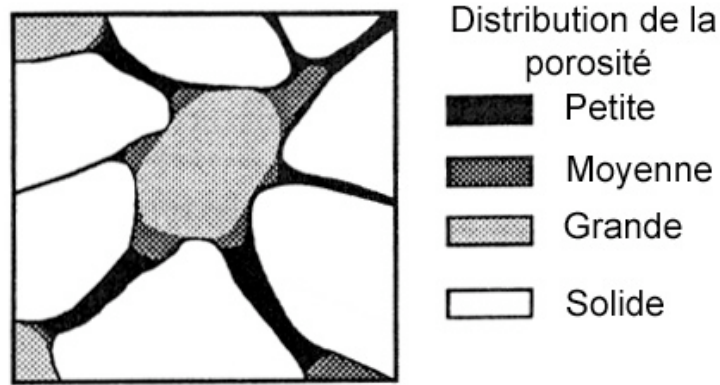


Figure V.5 : Section d'un pore avec la signification des régions du pore par rapport au processus de transport (d'après Meng and Sveinsdottir 1997).

Le même type d'observation est remarquable sur des clichés des argilites au MEB (Fig. V. 6).

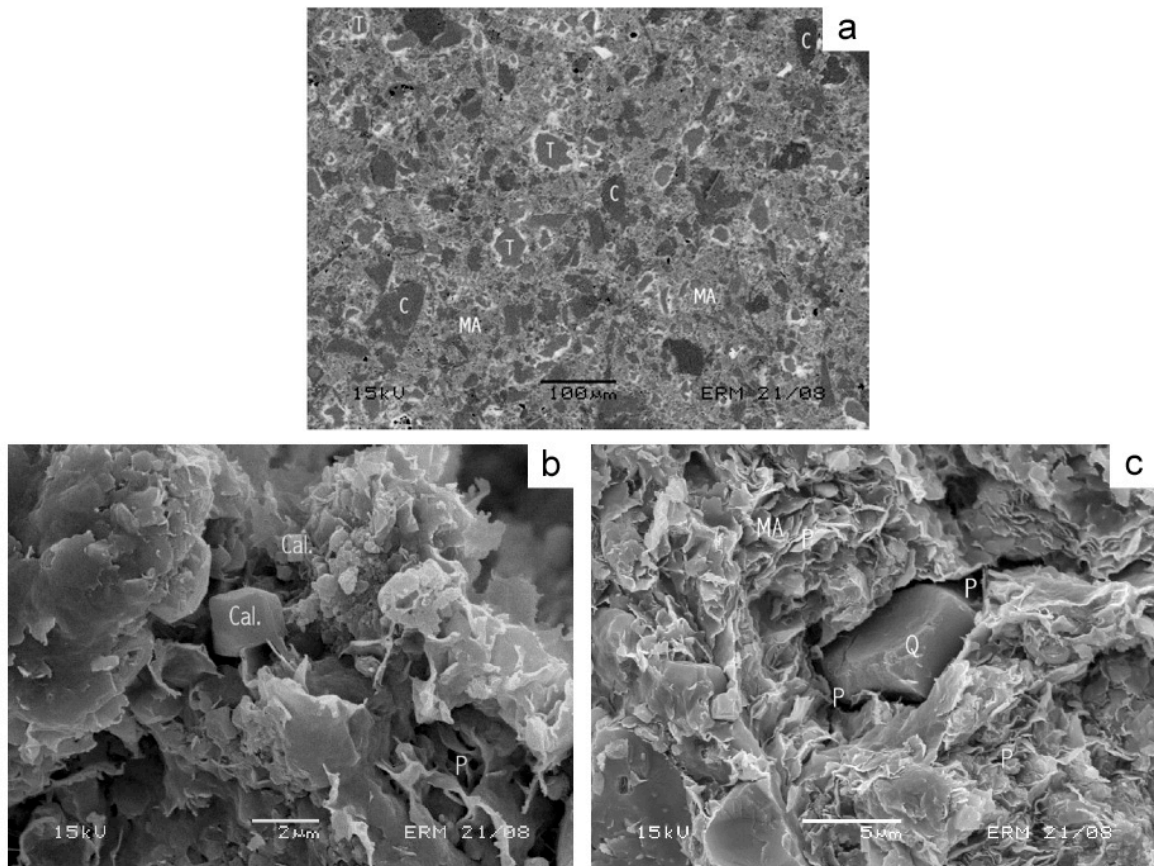


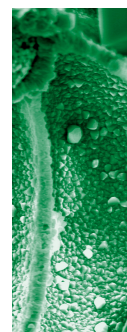
Figure V.6: Clichés d'observation de la porosité au MEB sur des argilites fraîches, extrait de ERM (2001). a) Echantillon HTM01147, zone pauvre en quartz et carbonates de grande taille. Image négatif du mode rétrodiffusé. Représentation d'une partie de la macroporosité. Légende: C=carbonates, T=tectosilicates et MA=matrice argileuse. Les zones de porosité sont des zones blanches. b) Echantillon HTM 01147, représentation des agrégats de particules d'argiles et d'un cristal de calcite automorphe dans cette matrice argileuse, image en mode électrons secondaires. On peut visualiser la porosité inter-agrégats dans la matrice argileuse. c) Echantillon HTM 805, quartz isolé dans la matrice argileuse, mode électrons secondaires. On visualise la porosité macroporosité autour du quartz et dans la matrice argileuse entre les agrégats. Légende : Cal. = calcite, Q = quartz, P = figure de porosité.

Par comparaison avec les résultats de porosimétrie au mercure dans les matériaux argileux, la porosité fractale serait le volume poreux libre et la porosité euclidienne (les pores de plus grande taille dispersés dans la matrice) serait le volume poreux piégé. Le volume poreux piégé est considéré comme le volume utilisable pour le transport. La différence par rapport au volume total correspond au volume utilisable pour l'interaction fluide/roche. Le volume poreux euclidien correspond à environ 50 à 60% du volume poreux total. Le volume poreux piégé (euclidien, transport) diminue quand les rayons d'accès diminuent. Le volume poreux libre (fractal, interaction) est minimum pour les grands diamètres d'accès. L'aspect fractal des argiles gonflantes (telles que la montmorillonite) a été étudié par Ben Ohoud et Van Damme (1990). Ces auteurs montrent que les lois d'auto-similarités s'appliquent à la porosité ouverte et à la surface accessible à des molécules non polaires. La dimension fractale est contrôlée par la nature des ions adsorbés et correlable avec la propagation à l'échelle locale.

La géométrie des pores qui permet le piégeage des fluides se distinguent en plusieurs mécanismes (Wardlaw and McKellar, 1981): forme et tailles de pores, seuils et rapport entre la taille des seuils et des pores, le degré de coordination (i.e. nombre d'accès à un pore) entre seuils et pores, répartition aléatoire ou non des pores, conditions des surfaces ou rugosité des seuils et des pores. Ces aspects permettent alors de construire des modèles de forme des vides et Van Brakel (1975) propose une synthèse sur les modèles de réseau poreux et les processus de transport. Hormis, les modèles à base de cylindres et d'espace entre deux plaquettes, de nombreux autres modèles ont été proposés (elliptiques, coniques, lenticulaires,...) mais aucun modèle ne fournit une image correcte de la structure du réseau poreux d'une succession d'évasements connectés par des seuils et des constriction.

Les causes de piégeage du mercure sont nombreuses (Wardlaw and McKellar, 1981), mais on retiendra surtout la forme et les tailles des pores, des seuils et le rapport entre la taille des seuils et des pores, le degré de coordination (i.e. nombre d'accès à un pore) entre seuils et des pores. Ces aspects permettent alors de construire des modèles de forme des vides, Van Brakel (1975) propose une synthèse sur les modèles de réseau poreux et les processus de transport. Hormis, les modèles à base de cylindres et d'espace entre deux plaquettes, de nombreux autres modèles ont été proposés (elliptiques, coniques, lenticulaires,...) mais aucun modèle ne fournit une image correcte de la structure du réseau poreux d'une succession d'évasements connectés par des seuils et des constriction. Les premières tentatives de modélisation couplant mesures expérimentales et loi de comportement sont initiées par le développement d'un logiciel "Pore-Cor" piloté par Peters Matthews (Matthews et al., 1993, 1995).

La pression nécessaire pour saturer un vide ne dépend donc pas de la géométrie de ce vide mais de la taille de l'accès à ce vide. La surface du réseau poreux calculée est donc fautive et donne une image incorrecte de la structure du réseau. Kloubek (1994) propose alors de présenter les résultats en fonction de la pression et non plus en fonction du diamètre.



5.1.4. Mécanismes générant des erreurs sur la mesure de la porosité

Certains effets sont à prendre en compte et à évaluer pour déduire l'erreur des mesures de porosité. Un premier effet est celui de la surface d'injection (Wardlaw and Taylor, 1976) qui est mesurée sur un échantillon partiellement recouvert de résine pour éviter l'intrusion de mercure par ces surfaces recouvertes, et sur un échantillon témoin non recouvert. Les volumes poreux injectés par ces deux protocoles sont comparables, les courbes d'injection et de retrait également sauf la courbe d'injection pour les gros diamètres d'accès où le volume mesuré est plus faible. Cet effet est dû à une diminution des effets de surface sur les échantillons recouverts.

Cette mesure se rapproche du cas réel d'un réseau poreux infini, contrôlé uniquement par la taille des seuils d'accès aux pores. On rappelle que le seuil d'accès est le moment où la pression appliquée sur le mercure est suffisante pour pénétrer le réseau poreux (Chatzis and Dullien, 1981)

L'endommagement créé par la pression d'injection est aussi un facteur déterminant dans la validité des mesures de porosité. Ces dommages sont difficilement estimés mais sont réparables avec la vérification de la constance de la valeur de la porosité piégée entre deux cycles d'injection. Un décalage entre la courbe d'injection et la courbe de ré-intrusion à la même pression appliquée peut-être due à des microruptures dans le réseau qui génère de la porosité supplémentaire et donc déplace les seuils d'accès vers les valeurs plus grandes, i.e. pression plus faible pour pénétrer les microfissures formées (Kloubek, 1994).

L'effet de taille des échantillons, peut aussi avoir des effets sur les mesures de porosité. Un échantillon de trop petite taille génère des variations importantes dans la taille des pores mesurés par rapport aux vraies tailles. A contrario, si l'échantillon est trop gros, des effets de bords sont créés piégeant une grande partie du mercure en surface dans les petits pores alors que le "vrai" réseau poreux ne possède pas forcément de petits pores. Ces types d'erreur peuvent être évités avec un moulage en plastique qui facilitera les retrait de Hg du réseau poral de surface lors de l'arrêt de la pression. Il faut donc trouver un échantillon de taille la plus optimale. Dans nos échantillons, l'effet de taille ne semble pas jouer car les mesures sur des échantillons proche de 11 cm³ (taille des échantillons pour les mesures magnétiques) sont identiques à celles d'échantillon de 2 cm³.

L'effet de vitesse d'injection est aussi un paramètre très important à optimiser pour les mesures car une vitesse trop rapide tend à déplacer la courbe d'injection vers les hautes pressions et la courbe de retrait vers les basses pressions. Une vitesse rapide d'injection ne permet alors pas la saturation complète (Wardlaw and Taylor, 1976) et ce d'autant plus que la pression d'injection devient forte.

5.1.5. Dispositif expérimental et mode opératoire d'injection au mercure

Avant les injections de mercure, les échantillons sont pesés puis placés dans la cellule du pénétromètre (Fig. V.7a). Le pénétromètre contenant l'échantillon est également pesé puis placé dans la partie basse pression de l'appareil (Fig. V.7b). Le vide est appliqué dans tout le système puis le mercure est drainé dans le pénétromètre sans pression appliquée afin de faire pénétrer le mercure dans l'échantillon par les plus grands pores. Lorsque l'on ouvre le réservoir de mercure, une dépression existe entre ce réservoir et le système, le mercure envahit le pénétromètre par la canule. La pression est augmentée jusqu'à la pression atmosphérique. La pression atteinte est de 50 µm de mercure, c'est à dire une pression de 0,001 MPa à la fin du cycle de basse pression.

La canule (Fig. V.7a) est recouverte d'un film métallique. Il existe une capacitance électrique entre ce film et le mercure. Lorsque le mercure entre dans l'échantillon, la canule se vide et crée une variation de capacité enregistrée à chaque pas de pression par la capacitance. Le volume et le diamètre de la canule étant parfaitement calibrés à partir des variations de capacité, il est facile de calculer le volume de mercure qui entre dans l'échantillon à chaque pas de pression, c'est à dire à chaque diamètre d'accès à la porosité. Ainsi, une fois la pression atmosphérique atteinte (i.e. après les mesures de basse pression), le pénétromètre est pesé avec le mercure puis positionné dans la partie haute pression. Pour appliquer une pression sur le mercure, l'appareil utilise une huile haute pression qui pousse le mercure dans la canule.

Le principe de la mesure est le même qu'en basse pression, la mesure est effectuée à chaque pression une fois l'équilibre de pression atteint. Ce temps d'équilibre est défini par l'opérateur et représente le temps minimum qu'il faut au système pour s'équilibrer après chaque pas de pression.

On augmente, de façon automatisée, très progressivement la pression d'injection sur le mercure (P_{Hg}), pour éviter les effets de surpression locale, pour couvrir une gamme de diamètre d'accès de 400 à 0,06 μm , soit des pressions de 0,001 à 450 MPa. Les pressions sont appliquées par paliers successifs avec une attente de l'équilibre de la pression appliquée entre chaque palier (équilibre nécessaire pendant au moins 3 minutes). Le volume de mercure qui a pénétré dans l'échantillon est mesuré pour obtenir la courbe d'injection $V_{Hg} = f(P_{Hg})$. Des cycles d'injection-retrait sont répétés 1 ou 4 fois selon le cas, avec une pression toujours plus forte après chaque cycle pour arriver au maximum de pression exercée par le porosimètre.

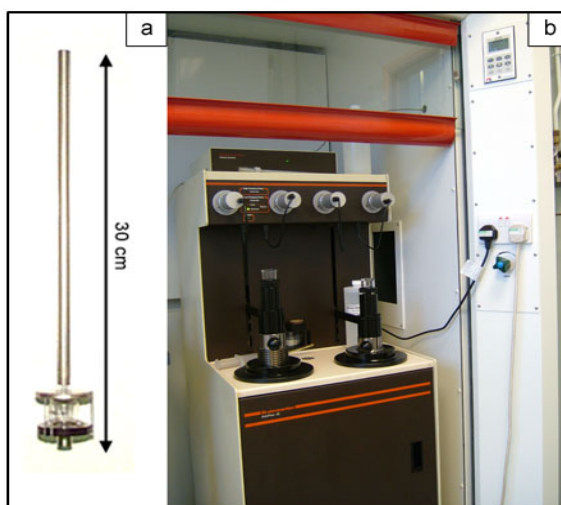
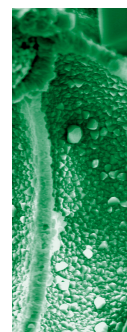


Figure V.7: Dispositif de porosimétrie mercure. a) Canule utilisé pour les mesures de porosité et b) porosimètre Micromeritics avec 4 dispositifs de basse pression et 2 dispositifs de haute pression d'injection.

Si la courbe d'injection atteint un palier en haute pression, pente nulle, la roche est alors jugée saturée par le mercure. La distribution des diamètres de pores est plus facilement déduite grâce à la dérivée première de la courbe d'injection: $\Delta V_i = V_i - V_{i-1} = f(di)$. Les pics observés sont les diamètres moyens d'une population de pore. Il est important de noter ici une limite de cette méthode, hormis l'hypothèse conventionnelle que les pores ont des formes cylindriques, est liée à l'effet goulot ou bouteille d'encre (Fig. V.8). En effet, la pression d'injection est associée à la taille des seuils d'accès, c'est à dire celle du vide qui donne accès aux vides plus gros qui sont derrière (et donc qui sont à pression de saturation plus faible). Le volume mesuré est celui du vide qui contrôle l'accès plus celui de la cavité qui est derrière (Fig. V.8) Cette différence de taille est à l'origine d'un autre phénomène important qu'est le piégeage. C'est ce paramètre géométrique, le rapport entre le diamètre du seuil d'accès et de la cavité qui entraîne le piégeage du mercure dans les échantillons lorsque la pression appliquée sur le mercure est ramenée à la pression atmosphérique



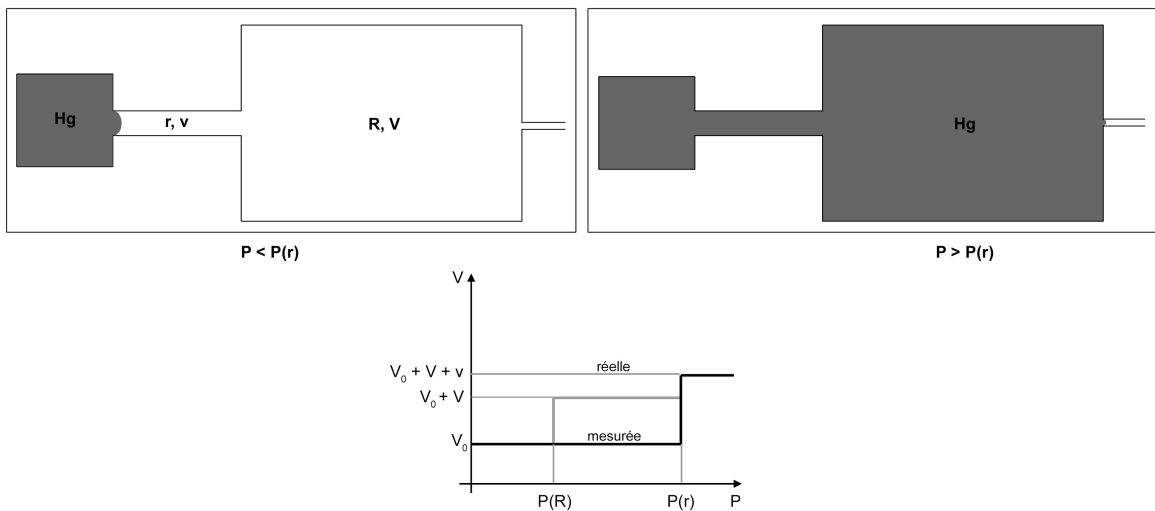


Figure V.8: Schématisation de l'effet de goulot dans les injections au mercure en fonction de la pression et courbe de variation du volume injecté en fonction de la pression appliquée.

5.2. Anisotropie du réseau poreux

Une nouvelle approche est proposée dans ce mémoire, elle consiste à mesurer l'anisotropie de la connectivité du réseau poreux dans les argilites. Cette méthode a été testée par Surma et al. (2003) dans des grès. On se propose d'appliquer et développer cette approche dans les argilites de Bure qui sont très peu perméables.

L'anisotropie de porosité, ou plutôt de connectivité, a été mesurée à partir de 3 parallélépipèdes taillés chacun parallèlement à l'un des axes d'ASM. Ils sont ensuite enrobés de résine pour empêcher le mercure de pénétrer par ces faces traitées, sauf les deux faces opposées perpendiculaires à l'axe ASM de l'échantillon préparé, et enfin soumis à des injections au mercure pour tenter d'observer une possible relation entre ASM et porosité (Fig. V.9).

Trois parallélépipèdes ont été extraits parallèlement aux axes d'ASM mesurés

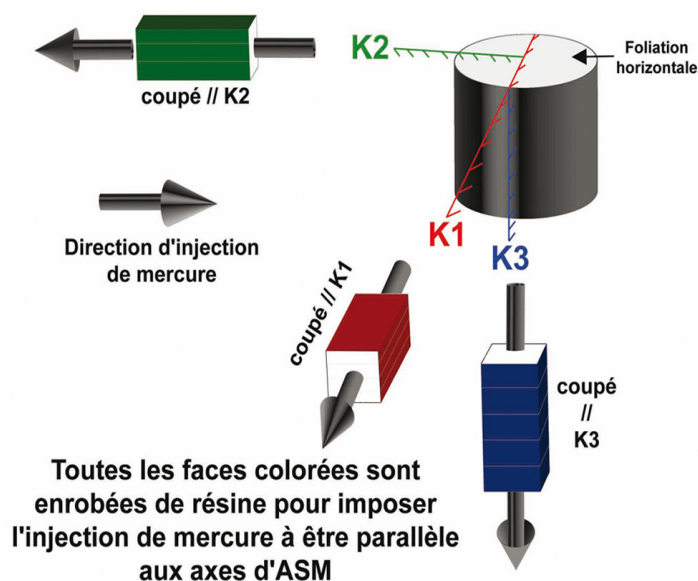


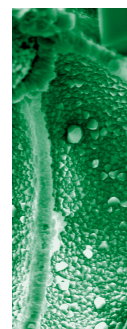
Figure V.9: Méthode de préparation des échantillons pour les injections orientées de mercure.

Les cycles d'injection-retrait sont mesurés pour chacun des parallélépipèdes avec l'objectif d'analyser les effets d'anisotropie des géométries des pores. La comparaison des courbes d'injection entre ces différents échantillons permet de vérifier si la porosité est développée dans des plans et directions préférentielles en relation avec la disposition des minéraux, reflété par l'ASM, ou d'autres structures telles que fente de tension, microfractures, stylotithes.

5.3. Tests de mesure de l'anisotropie de la connectivité de la porosité dans les argilites. Esteban, L., Géraud, Y. and Bouchez, J.L. (2006), in *Physics and Chemistry of the Earth*.

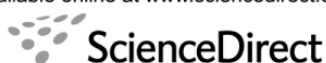
Titre: Anisotropie de la connectivité du réseau poreux d'argilite jurassique du bassin Parisien de Paris. Pore network connectivity anisotropy in Jurassic argillite specimens from eastern Paris Basin (France).

Résumé: Dans le but de tester la faisabilité du stockage des déchets nucléaires, l'Andra, l'agence Française pour la gestion des déchets radioactifs, nous donne l'opportunité d'étudier des échantillons préservés de roche argileuse du Jurassique du bassin Parisien. Ces roches, déposées pendant le Callovien et le début de l'Oxfordien, sont des marnes plus ou moins sombres constituées d'argiles, de carbonates et de silts. La susceptibilité magnétique et la rémanence varie en relation avec la concentration relative d'argile, carbonate et silt et les orientations préférentielles des minéraux caractérisées par l'anisotropie de la susceptibilité magnétique. Des tests sur des échantillons, prélevés dans le forage vertical HTM102 de l'Andra et issus de la base et du sommet de la formation d'argilite du Callovo-Oxfordien, ont été mesurées pour leurs connectivités de porosité en utilisant la technique d'injection au mercure. En appliquant une injection de mercure parallèlement à une direction choisie, on est capable de déterminer l'anisotropie de la connectivité le long des trois principaux axes de la susceptibilité magnétique. On trouve que les échantillons les plus argileux ont une connectivité de porosité importante et quasi-isotrope dans laquelle les seuils des pores les plus petits ont un diamètre $< 0,02 \mu\text{m}$. Au contraire, les niveaux plus carbonatés ont une anisotropie et une porosité connectée plus petite, accessible par des diamètres de pores d'environ $0,08 \mu\text{m}$. A l'exception des échantillons plus carbonatés où la plus large connectivité est selon l'axe vertical, attribuée à la présence de fentes de tension perpendiculaires au litage, l'anisotropie de la connectivité corrèle positivement avec l'anisotropie magnétique et donc avec l'arrangement des minéraux.





ELSEVIER

Available online at www.sciencedirect.com

Physics and Chemistry of the Earth xxx (2006) xxx–xxx

**PHYSICS
and CHEMISTRY
of the EARTH**
www.elsevier.com/locate/pce

Pore network connectivity anisotropy in Jurassic argillite specimens from eastern Paris Basin (France)

Lionel Esteban ^{a,b,c,*}, Yves Géraud ^c, Jean Luc Bouchez ^a^a LMTG, UMR CNRS #5563, GdR FORPRO, 14 Avenue E. Belin, 31 400 Toulouse, France^b Andra – Direction Scientifique, 92298 Chatenay-Malabry Cedex, France^c EOST, IPGS, UMR#7516, GdR FORPRO, 1 rue Blessig, 64067 Strasbourg Cedex, France

Received 1 July 2005; received in revised form 7 November 2005; accepted 7 November 2005

Abstract

In order to test the feasibility of nuclear waste storage, Andra, the French radioactive waste management agency, gave us the opportunity to study preserved specimens of Jurassic clay-rich rocks from eastern Paris Basin. These rocks, deposited during the Callovian and beginning of the Oxfordian, are dark- to light-grey marls that consist mainly in a mixture of clay, calcite and silt. Magnetic susceptibility and remanence vary according to the clay/calcite/silt ratios and the mineral preferred orientations are characterized by the anisotropy of the magnetic susceptibility. A few test specimens, sampled from borehole-core #HTM 102, and coming from the base and top levels of the Callovo-Oxfordian argillite formation, were subjected to connected porosity measurements using the mercury injection technique. By imposing mercury to flow parallel to a given direction, we were able to determine the anisotropy of connectivity along the three principal magnetic susceptibility axes. We find that the clay-richest specimens have a large and sub-isotropic connected porosity which is mostly accessible through the smallest pore threshold diameters ($<0.02\ \mu\text{m}$). By contrast, carbonate-enriched specimens have anisotropic and smaller connected porosities accessible through larger pore thresholds ($\sim 0.08\ \mu\text{m}$). Except in a carbonate-enriched specimen where the largest connectivity axis is vertical, attributed to tension cracks normal to bedding, the pore connectivity anisotropy positively correlates with the magnetic anisotropy, hence with the mineral arrangement.

© 2006 Elsevier Ltd. All rights reserved.

Keywords: Porosity; Anisotropy; Connectivity; Claystone; Mercury; Magnetic susceptibility; Remanence; Paris Basin

1. Introduction and sampling

Nuclear waste efficiency and security at short and long time scales depend on the rock transfer properties of the geological barrier which, in turn, depend on the rock microstructure and anisotropy. In this paper, we define anisotropy parameters of the rock structure using data from both magnetic susceptibility and connectivity of the

porous network. The former data provide textural information at the grain-scale through the orientation distribution of the magnetic particles. The latter data provide information on the pore volumes that exist between the rock particles, which may result from sedimentary, diagenetic and/or structural processes.

This study concerns clay-rich rocks that were deposited during the Callovian and beginning of the Oxfordian, also called Callovo-Oxfordian argillites. They host the laboratory of the French radioactive waste management agency (Andra), under construction at a depth of about 490 m to the east of the Paris Basin (France). The specimens under study were taken from the Andra borehole HTM102 (Fig. 1b) which, for the best preservation of the core, was drilled with oil (WGS84: lat: $48^{\circ}27' 40.9''\text{N}$; long: $5^{\circ}22'6.1''\text{E}$; $z = 351\ \text{m}$ above sea level). This borehole is

* Corresponding author. Address: LMTG, UMR CNRS #5563, GdR FORPRO, 14 Avenue E. Belin, 31 400 Toulouse, France. Tel.: +33 05 61 33 26 42.

E-mail addresses: esteban@lmtg.obs-mip.fr (L. Esteban), ygeraud@illite.u-strasbg.fr (Y. Géraud), bouchez@lmtg.obs-mip.fr (J.L. Bouchez).

¹ Now at Paleomagnetism, Geological Survey of Canada, Pacific, 9860 West Saanich Road, POB 6000, Sidney, B.C., Canada, V8L 4B2.

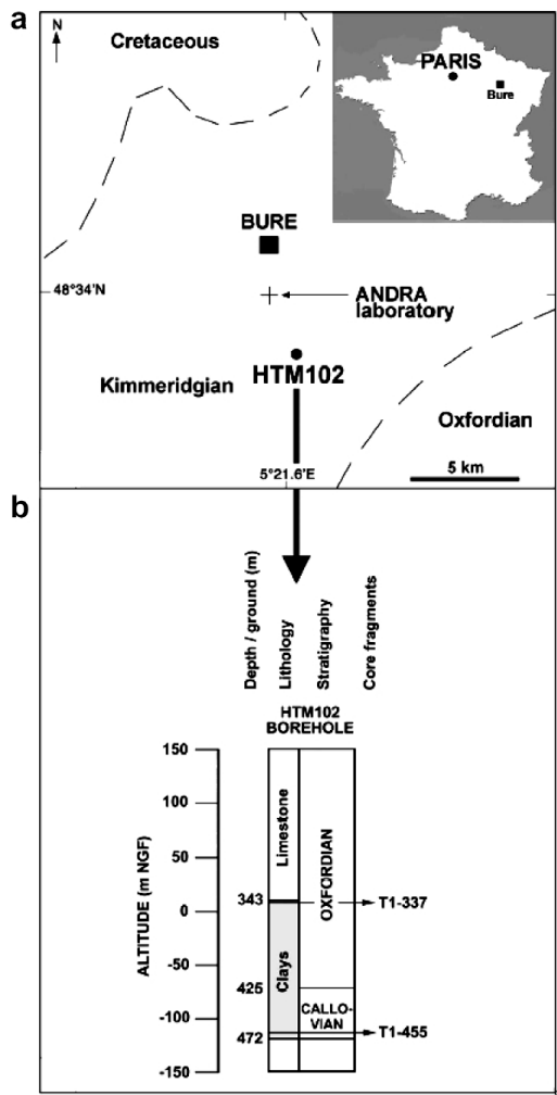


Fig. 1. Localization of the HTM102 borehole, Eastern Paris Basin (a) and associated geological log (b).

located at ~ 4 km to the south of the village of Bure and cross-cuts the whole ~ 130 m-thick Callovo-Oxfordian formation (Fig. 1a).

Although apparently homogeneous, these argillites yield compositional variations allowing large scale geological correlations, such as the Maximum Clay Zone (Gaucher et al., 2004) in the middle of the formation (45–50% of clay minerals) ascribed to the maximum marine flooding of Early Oxfordian age, attributed to the onset of connection between the Central Atlantic ocean and the Paris Basin. Pyrolysis data of the organic fraction (Ayrougoudal et al., 1996; Landais and Elie, 1999) and fluid inclusion

studies demonstrate that the temperature in these argillites did not reach 50°C , hence they were buried not deeper than a few hundreds of metres. Therefore, they retain most of their original physical and chemical properties. The specimens under study were collected from the upper and lower parts of the Callovo-Oxfordian, i.e. above and below the level of the Andra laboratory, from two 30 cm-long, 90 mm in-diameter, core-samples (Fig. 2). The lower core-sample (T1-455; ~ 469 m below ground surface) is homogeneous, richer in illite and characterized by the presence of kaolinite corresponding to the transition, at the end of the Dogger, from a carbonate platform to an argillaceous deposit environment (Andra, 1999, 2004). The upper core-sample (T1-337; ~ 343 m below ground surface) is more heterogeneous with illite-enriched laminae interbedded with mainly carbonate-enriched laminae corresponding to the transition toward the Oxfordian carbonate platform. The core-samples were sliced in dry condition, at low speed in order to preserve the integrity of the samples, into 22 mm-thick core-sections, or disks. Five 25 mm in-diameter cylindrical specimens were drilled, also in dry condition, perpendicularly to each of these disks (Fig. 2). This procedure helped obtaining a set of mini-cores, coaxial with the main core (i.e. vertical) and of standard size for magnetic measurements. Note that, if sample preparation best preserves the texture of the rock, its water content, on the order of 7% in the original setting, has been somewhat lowered during the experimental procedures.

Seven core-sections were subjected to both magnetic and porosity measurements, three from core-sample T1-455 (10A, 11A and 11C) and four from core-sample T1-337 (2A, 3C, 4B and 5D). Magnetic susceptibility and anisotropy measurements were performed using the KLY3 susceptometer (Agico Ltd.), and the intensity of the natural remanence was measured with the JR5-A spinner magnetometer (Agico). After the magnetic measurements were done, the cylindrical specimens were resampled into ~ 2 cm \times 1 cm \times 1 cm parallelepipeds whose sides were cut perpendicularly to the three predetermined susceptibility axes (K_1 , K_2 , K_3). These new specimens were epoxy-coated except along the opposite faces perpendicularly to which mercury injection was realized (Fig. 2). Three such specimens ($\perp K_1$, $\perp K_2$ and $\perp K_3$) were submitted to vacuum then to classical mercury injection measurements using the Micromeritics (Ltd.) porosizer #9215-9220.

The magnetic susceptibility magnitude will be compared to the maximum mercury volume injected on the one hand, and the anisotropies of magnetic susceptibility will be compared to the connected and trapped volumes of injected mercury in the three parallelepipeds of each specimen, on the other hand. These data will be interpreted with the help of scanning electron microscopy (SEM) observations in order to unravel the textural organization of the pore network, and hopefully, to extract the sedimentary signal from the other signals.

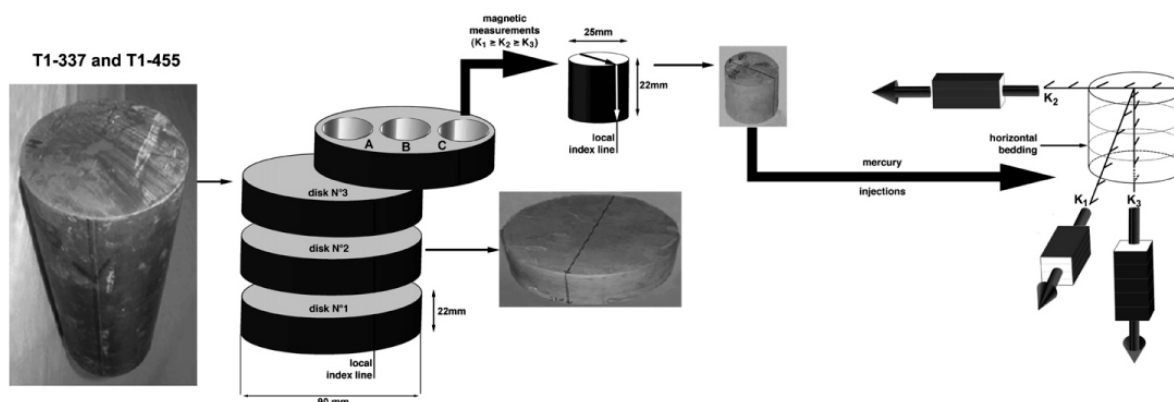


Fig. 2. Preparation of the specimens for magnetic measurements and directional connected porosity measurements. The parallelepipedic specimens are epoxy-coated on faces (in grey) parallel to direction of mercury injection (arrow).

2. Magnetic measurements

The magnetic susceptibility (K), that represents the slope of the magnetization curve generated by a varying external weak field, distributes into diamagnetic (weak and negative values), paramagnetic (weak and positive values) and ferromagnetic behaviors (strong, positive with additional remanence). Magnetic susceptibility magnitudes of the clay-rich specimens from T1-455 at the base of the Callovian, are constant and high, from 117 to 126 μSI (Table 1). By contrast, in T1-337, the more heterogeneous upper part of the argillaceous Callovo-Oxfordian section, is richer in carbonate and its susceptibility is less constant, ranging from 18 to 70 μSI . Both sample sets carry a paramagnetic signal coming mainly from the clay fraction (illite and smectite). However, the natural remanent magnetization (NRM), ranging from 83 to 259 $\mu\text{A/m}$ in T1-337 and from 265 to 330 $\mu\text{A/m}$ in T1-455, attests to the presence of a ferromagnetic contribution principally ascribed to the silt fraction. The mineral contributions are best evidenced using a K versus NRM plot (Fig. 3a) where the low values represent the carbonate fraction, and the high ones represent both the clay and the silt contributions (Esteban et al., 2006).

The magnetic susceptibility is a second-rank tensor represented by a three axes ellipsoid ($K_1 \geq K_2 \geq K_3$) that describes the rock petrofabric (Hrouda, 1982; Borradaile and Henry, 1997). In rocks, K_1 usually represents the preferred direction of mineral organization (lineation) and K_3 is perpendicular to the preferred planar mineral organization (normal to bedding or laminae). The scalar aspects of the anisotropy concern the anisotropy degree, defined as $P = ([K_1/K_3] - 1) \times 1000$ in ‰ and the planar ($F = ([K_2/K_3] - 1) \times 1000$ in ‰) and linear ($L = ([K_1/K_2] - 1) \times 1000$ in ‰) anisotropies. In our specimens, P varies from 22.6‰ to 25.4‰ in T1-455, and from 5.3‰ to 15.3‰ in T1-337 (Table 1). The anisotropy degree is principally due to the sub-horizontal laminae or micro-layers parallel to bedding ($\perp K_3$) onto which clay mineral plates, and eventually a few other magnetic grains, are disposed. Accordingly, total anisotropy is higher in the clay richer specimens (T1-455) than in the carbonate-enriched ones (T1-337) and the values of the planar anisotropy (F) are close to those of the total anisotropy (P ; Table 1).

Although faint in intensity and ranging from $L = 0.3\%$ (\sim isotropic) to $L = 3.5\%$, a direction of anisotropy is always measured within the bedding plane (K_1 ; Table 1).

Table 1
Magnetic and porosity data for the studied collection of specimens from seven core-sections of HTM102

Specimens	K (μSI)	M ($\mu\text{A/m}$)	L (‰)	F (‰)	P (‰)	K_1		K_3		V_c (%)	Mean, V_t (%)
						Dec	Inc	Dec	Inc		
T1-337-2A	70	259	0.3	13.2	13.4	100	1	182	82	8	57.13
T1-337-3C	18	83	3.5	1.8	5.3	41	3	330	82	4	65.07
T1-337-4B	21	86	2.1	5.7	7.8	61	1	327	72	2	58.06
T1-337-5D	18	102	1.6	13.7	15.3	104	1	207	86	4	56.72
T1-455-10A	120	310	0.9	21.7	22.6	51	2	183	87	10	–
T1-455-11A	117	265	0.9	23.4	24.4	54	2	176	86	11	49.04
T1-455-11C	126	330	0.8	24.4	25.4	51	1	152	85	8	59.77

K : magnetic susceptibility, M : natural magnetic remanence intensity, L : linear magnetic anisotropy, F : planar anisotropy, P : anisotropy degree, K_1 : long axis of the magnetic anisotropy (Dec: azimuth with respect to north, Inc: inclination with respect to horizontal), K_3 : short axis of the magnetic anisotropy, V_c : porosity measured at maximum mercury injection pressure; mean V_t : trapped porosity in uncoated specimens.

Please cite this article in press as: Esteban, L. et al., Pore network connectivity anisotropy in Jurassic argillite ..., J. Phys. Chem. Earth (2006), doi:10.1016/j.pce.2005.11.001

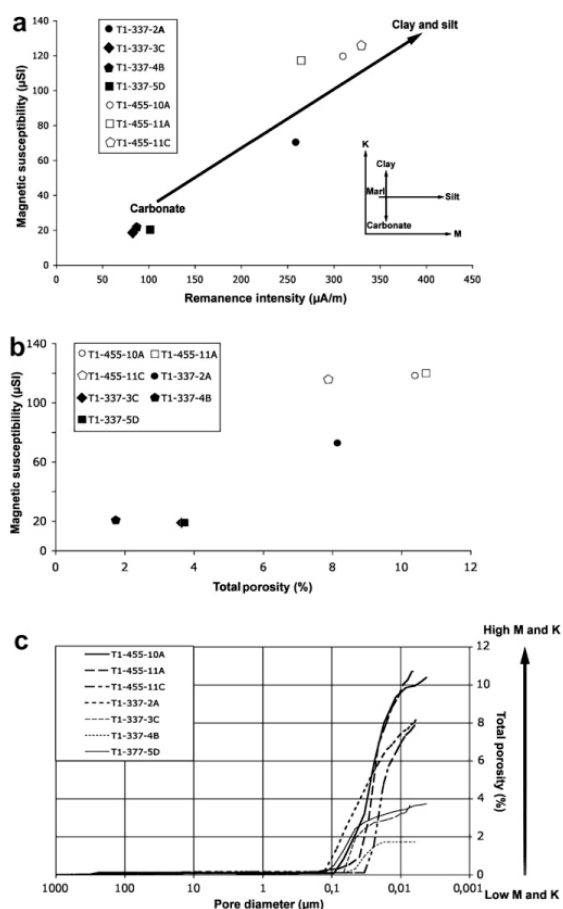


Fig. 3. Relationships between magnetic and global porosity properties for the seven core-sections. (a) Magnetic susceptibility versus natural magnetic remanence, (b) magnetic susceptibility versus total porosity and (c) total porosity versus pore threshold diameters.

When restored into the geographical frame by paleomagnetic techniques (Butler, 1998), using the viscous remanent direction attributed to the imprint of the present magnetic north (Esteban et al., 2003), this K_1 direction reveals to be fairly constant (Esteban et al., 2006) around NE-SW in both T1-455 and T1-337 (Fig. 5a). This stable direction is interpreted as a sedimentary signal. The terrigenous flux that orients minerals during deposition are parallel to the water currents (Ellwood and Ledbetter, 1979). In our case, the currents are supposed to come from the northeastern regions, in agreement with paleogeographic and sedimentological studies (Dercourt et al., 1985; Pellenard et al., 1999; Pellenard, 2003; Gaucher et al., 2004).

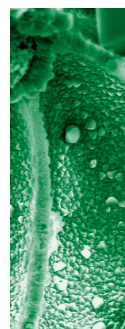
3. Porosity measurements

Network porosity studies using drainage and withdrawal measurements of injection of mercury, a non-wet-

ting liquids has been reviewed by Van Brakel (1975). These measurements were developed after the sixties through detailed wetting angle and pore morphology studies. They were applied to various materials like soils (Pellerin, 1980), paper-coats and sandstones (Matthews et al., 1993), cements (Xu et al., 1997a,b) and other heterogenous materials (Matthews et al., 1995). The pressure is progressively applied to the mercury, from 0 MPa to 300 MPa, at constant room temperature (20 °C) in order to avoid variations of the mercury specific volume. Injection into the porous network depends on the threshold size and shape of the pores according to the Washburn's law: $d = (2\gamma\cos\theta)/P$ (d , pore diameter; γ , surface tension; θ , wetting angle of the mercury; and P , applied pressure). The injected volume of mercury, measured after calibration of the electric conductivity of the experiment injection vessel, determines the pore volume which is accessible at a given pressure of injection, hence at a given pore diameter, from 1000 μm to 0.0042 μm . Before mercury injection, the specimens were subjected to a vacuum of $\sim 5 \times 10^{-2}$ Torr in order to improve the mercury drainage of the pore network. For each specimen, two types of measurements were performed: (1) bulk connected porosity measurements on uncoated specimens, and (2) oriented connected porosity measurements using the coated parallelepipeds (Fig. 2). In both cases, the connected porosity was measured at the maximum injection pressure and the porosity values were plotted against the threshold pore diameters (Fig. 3c).

Porosity measurements are interpreted using pore network models which, classically, are based on two functions. The first one represents the fluid transport through the network and the second, the reactivity between the fluid and the rock (Northon and Knapp, 1977; Northon and Knight, 1977; Katsube et al., 1985). These models, largely developed for granitic rocks, led to a partition between the largest pore threshold diameters devoted to fluid transport, as described by the theory of percolation (Katz and Thompson, 1986, 1987), and the smallest threshold diameters devoted to chemical reactions. A refined model (Meng, 1994; Aharonov et al., 1997) defines two separate sub-volumes in the same pore volume, one dedicated to fluid transport, the euclidian or free porosity (V_f), and the other to fluid-rock exchange, the fractal or trapped porosity (V_t). Using the latter description and the pore-shape effect on trapped mercury (Wardlaw and Taylor, 1976; Wardlaw and McKellar, 1981; Day et al., 1994), we propose to quantify both these pore volumes using mercury injection measurements (Géraud et al., 2003).

The trapped porosity (V_t) is calculated by subtracting the total connected porosity measured at maximum injection pressure (V_c) from the free porosity (V_f) measured by the withdrawal volume at a pressure of 0.1 MPa: $V_t = V_c - V_f$. The porosities V_c and V_f were measured through cycles of injections and withdrawals for different classes of threshold diameters (Fig. 4), using uncoated and coated specimens. Among the various factors that allow mercury to be trapped (Wardlaw, 1976; Chatzis



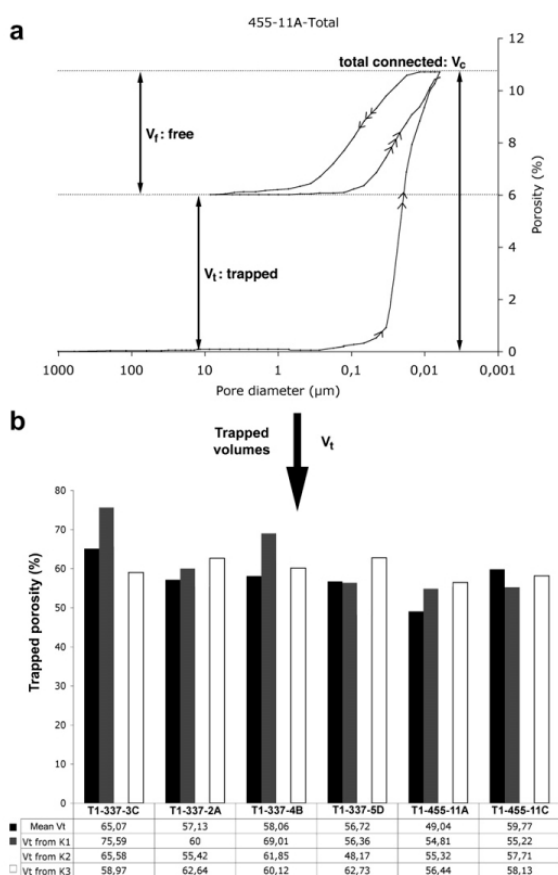


Fig. 4. Injection-withdrawal hysteresis experiments (a) and trapped volumes (b) $V_t = V_c - V_f$ parallel to the three principal magnetic axes using coated specimens (see Fig. 2). Mean V_t (blacks columns) was measured from uncoated specimens.

and Dullien, 1981; Kloubek, 1994), the geometrical effect ("the ink bottle effect") due to the pore/threshold ratio, is the main one (Wardlaw et al., 1987). Experiments give a critical value of 6 for this ratio above which trapping takes place in large voids connected by small thresholds.

In our argillites, the total connected porosity (V_c) depends on the percentage of clay which, at a first order, is proportional to the magnetic susceptibility (Fig. 3b). In the clay-rich specimens from T1-455, V_c is close to 10%, while in the clay-depleted ones (T1-337) V_c may be as low as 2%, with the exception of T1-337-2A, likely richer in clay, where V_c reaches 8% (Fig. 3a and b; Table 1). The free porosity (V_f) measured, as a function of the pore diameters through injection-withdrawal experiments, gives similar curves in all specimens (Fig. 4a). However, the trapped volumes differ depending on the clay/carbonate ratio. In T1-337, richer in carbonate, V_t is around 60%. It is slightly lower in T1-455, richer in clay (Fig. 4b).

4. Pore network connectivity anisotropy measurements

Oriented injection tests, devoted to quantify the pore network anisotropy, were first applied to granite and sandstone by Géraud and Gaviglio (2000), and by Surma and Géraud (2003). Six core-sections (disks) were selected for anisotropy connectivity measurements in order to assess the effect of petrofabric on connectivity, using the intensity of linear magnetic anisotropy (L) as a proxy for the directional fabric strength (Table 1). The connected porosity is shown in Fig. 5b for three of our core-sections (T1-455-11A, T1-337-4B and T1-337-3C) as a function of the pore diameter along the three principal magnetic axes (nine parallelepipedal specimens). These specimens have rather strong AMS anisotropies, ranging from 5.3‰ to 24.4‰, with linear anisotropies from 0.9‰ to 3.5‰ (Table 1). In specimen T1-337-3C which has the largest linear anisotropy value (3.5‰), the long magnetic axis corresponds to the highest connected porosity value and the short magnetic axis correlates with the lowest porosity value. Specimen T1-455-11A, which is almost isotropic parallel to bedding, yields identical connected porosity values along the three perpendicular directions. By contrast, in specimen T1-337-4B which has an intermediate L value, the long magnetic axis correlates with the lowest connected porosity and the short axis correlates with the highest connected porosity. Note that, for all these specimens, the threshold diameters range from 0.08 μm to 0.01 μm (Figs. 3c and 5b).

Trapped volumes along the principal magnetic axes have been measured in our six core-sections (18 specimens; Fig. 4b). Trapped volumes parallel to K_3 seem to be larger in some clay-enriched specimens (T1-337-2A and 5D) than in carbonate-enriched specimens (T1-337-3C and 4B). This strengthens the role of clay in the trapping capability of fluids.

5. Discussion

This new approach, that couples magnetic and porosity properties for both the scalar and directional aspects, aims at better defining the relationship that exists between the mineralogical nature on the one hand, and particles and pore arrangements, on the other. Our analysis bears on two specific rock-compositions coming from the basal and top parts of the Callovo-Oxfordian formation, and that result from different environmental conditions. High frequency paleoenvironmental variations are responsible, however, for some variation in the mineralogical content of the specimens.

5.1. Total connected porosity

Esteban et al. (2006) attribute the high magnetic susceptibility values of the Callovo-Oxfordian argillites to the dominance of clay and the low values to the dominance of carbonate. The signal of remanence is mainly ascribed to the silt fraction, including detrital iron oxides. A clear

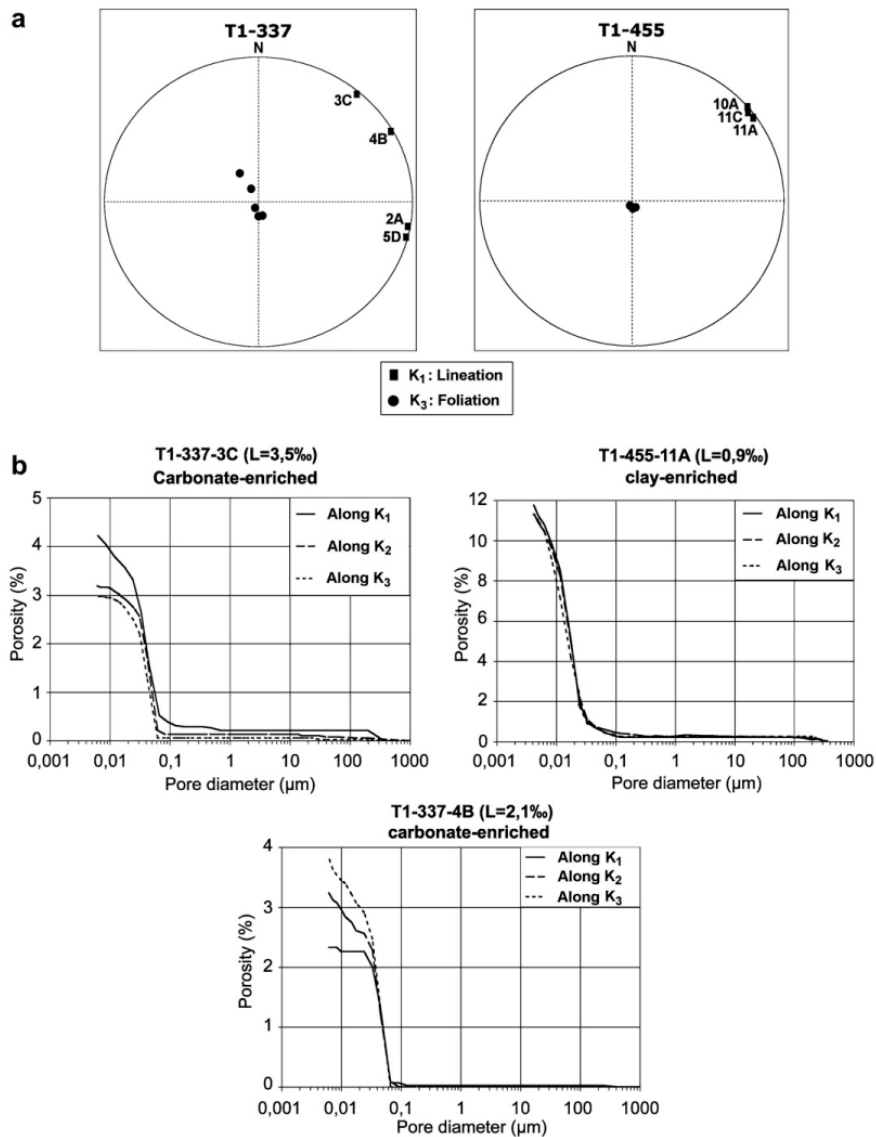
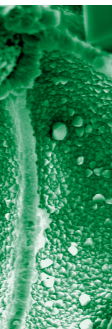


Fig. 5. Anisotropy of magnetic susceptibility axes (K_1 and K_3) of the seven core-sections re-oriented in the geographical frame (a): Porosity versus threshold pore diameters measured parallel to the three principal magnetic axes for three representative cases of the collection (b): T1-337-3C and 4B are carbonate-enriched with a high linear magnetic anisotropy and respectively, direct and inverse correlation with the magnetic axis magnitudes; T1-455-11A is clay-rich with a low linear magnetic anisotropy and isotropic connectivity.

positive correlation exists between the magnetic susceptibility, ranging from 18 to 126 μSI (Fig. 3b), and the total connected porosity that ranges from 8% to more than 11% for T1-455, and from 3% to 8% for T1-337. The highest porosities correspond to the specimens which are richer in clay (T1-455) while the lowest porosities come from the carbonate-enriched argillites (T1-337). This result may seem paradoxical but is explained, in the carbonate-enriched rocks, by a larger calcite cementation of the pore network during

late compaction or early diagenesis (Esteban and Taberner, 2003; Van Geet et al., 2005). The larger trapped volumes that were measured in the carbonate-enriched (Fig. 4b: T1-337-3C and 4B) reinforce this interpretation. By contrast, the threshold diameters are much smaller ($\sim 0.02 \mu\text{m}$) in the clay-rich specimens, for which saturation of the pore network is not reached, than in the carbonate-enriched specimens ($\sim 0.08 \mu\text{m}$) which saturate earlier (Fig. 3c).

Please cite this article in press as: Esteban, L. et al., Pore network connectivity anisotropy in Jurassic argillite ..., J. Phys. Chem. Earth (2006), doi:10.1016/j.pce.2005.11.001



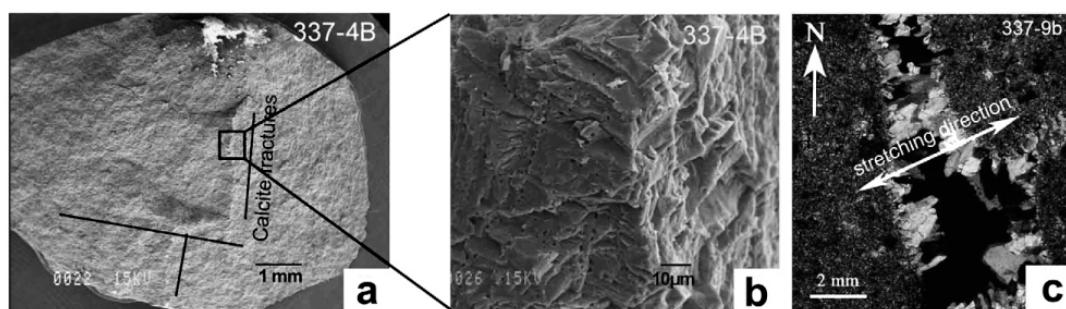


Fig. 6. Images of specimens from T1-337. SEM image of a microcrack (a) filled with micro-porous calcite (b) from specimen T1-337-4B. Tension-gash partly filled with calcite crystals from T1-337-9B (c), optical microscopy image.

5.2. Directional connected porosity and threshold diameters

The linear magnetic anisotropy within the bedding plane (lineation) is attributed to the preferred grain alignment of the silt fraction and/or to the zone-axis orientation distribution of the clay minerals (Esteban et al., 2006). Among the six core-sections that were subjected to connectivity measurements, three of them (T1-337-2A, 3C and 5D) yield a clear positive correlation between K_1 (respectively K_3) and the maximum (respectively minimum) connected porosity, in spite of the fact that the linear magnetic anisotropy does not exceed a few ‰. This agrees with our interpretation of K_1 being due to microchannels defined by the silt fraction (aligned grains) and/or by the zone axis of the clay minerals. By contrast, one specimen from another core-section having apparently the same lithology (T1-337-4B; Fig. 3a), has exactly the opposite behaviour, K_3 being parallel to the direction of maximum connected porosity (Fig. 5b). The much higher connectivity observed along the vertical axis likely results from the presence of subvertical microcracks, as imaged with the scanning electron microscope (SEM) in the same core-section (Fig. 6a and b). Such a behaviour seems to preferentially develop in the more carbonaceous specimens. In core-section T1-337-9B, that contains the same carbonate fraction as in T1-337-3B, SEM imaging reveals a tension-gash perpendicular to bedding (Fig. 6c) that possibly resulted from differential compaction, the carbonate-rich layers being less plastic than the clay-rich ones.

Two core-sections (T1-455 11A and 11C), the richest in clay (Fig. 3a), having both a high susceptibility and a high total connected porosity, have low linear magnetic anisotropies ($L < 1‰$) that correlate with sub-isotropic connected porosities in the bedding plane (Fig. 5b; T1-455-11A). What remains unexplained is that the porosity of this specimen has the same magnitude perpendicularly to the bedding, i.e. along K_3 (Fig. 5b; T1-455-11A), in spite of the fact that the planar magnetic anisotropy is rather strong, around $F = 25‰$, in agreement with the strong planar organization of the clay minerals. This contrasts with the carbonate-enriched specimens from T1-337 (T1-337-

3C, 4B and 5D) which have both low susceptibilities and low porosities, but in which the linear magnetic anisotropy may be as high as 3.5‰ (T1-337-3C).

Whatever the orientation of the coated-specimens, we observed almost identical threshold diameters, the largest being around 0.08 μm (Fig. 5b), similar to the threshold diameters of the non-coated specimens (Fig. 3c). In the clay-rich specimens, the connected porosity accessible through threshold diameters smaller than 0.02 μm represents more than 65% of the total porosity (Fig. 5b). This percentage may be even higher since saturation was hardly reached in our experiments. By contrast, in the carbonate-enriched specimens (Fig. 5b), where lower connected porosities and larger threshold diameters (~0.08 μm) are observed, saturation was reached along one or two of the smallest connectivity axes (Fig. 5b). In specimen T1-337-3C, this result suggests that the silt-enriched microchannels parallel to K_1 have a larger variety of pore diameters than the remaining rock-matrix. This interpretation agrees with K_1 being parallel to the principal transport direction.

Hence, if microfractures perpendicular to bedding are excluded, as in specimen T1-337-4B, we conclude that the magnetic lineation satisfactorily correlates with the direction of maximum connectivity. Azimuth of this lineation is found to be NE–SW for the clay-rich specimens, and partly NE–SW for the carbonate-enriched ones. This direction, which seems to be rather constant throughout the Callovo-Oxfordian, is interpreted as the direction of the terrigenous flux, and/or of the anisotropic compaction, possibly controlled by the slope direction of the Paris Basin (Esteban et al., 2006). In this frame, specimens having a linear anisotropy tending to zero, could reflect isotropic compaction or quiet sedimentary conditions. The latter is further attested by the high clay content of the specimens.

6. Conclusion

A first order, interpretation is allowed by the results of this pore network connectivity study, although based on a limited number of specimens. The clay-richest specimens of our collection have the largest free connectivities, little

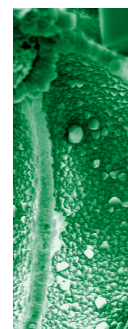
anisotropy of connectivity correlating with a lack of linear magnetic anisotropy, and particularly small pore threshold diameters. This contrasts with the carbonate-enriched specimens that have smaller free connectivities, rather large anisotropy of connectivity correlating with their magnetic anisotropy excepted in presence of microcracks, and larger threshold diameters. The orientation distribution of the constituting minerals of the Callovo-Oxfordian argillites, inherited from the original sedimentary or compaction conditions, are concluded to control both the magnetic and the network porosity properties.

Acknowledgements

GdR FORPRO (CNRS) and Andra Agency are kindly acknowledged for providing the studentship of Lionel Esteban at the Universities of Toulouse (LMTG, UMR CNRS no. 5563) and Strasbourg (EOST, UMR CNRS no. 7516). Alain Trouiller (Andra) is thanked for his numerous suggestions and Roberto Siqueira for his constant support in the rock magnetism laboratory at LMTG. Thierry Aigouy (LMTG) and Philippe Karcher (EOST) are warmly thanked for their help in SEM imaging. We also thank Dennis Lahondes, Claude Aurière and Hervé Rebours for providing the sample collection from the core-storage (Andra laboratory). Antonio Lhoret is thanked for his suggestions to improve this paper. This is a contribution FORPRO #2005/03 A.

References

- Andra, 1999. Référentiel géologique du site de Meuse/Haute-Marne. Rapport A-RP-ADS 99-005/B.
- Andra, 2004. Analyses minéralogiques et géochimiques, forages de reconnaissance de la fracturation: EST(FRF)211. Rapport final (RDM), D-RP-OERM 04 009, pp. 419.
- Aharonov, E., Rothman, D.H., Thompson, A.H., 1997. Transport properties and diagenesis in sedimentary rocks: the role of micro-scale geometry. *Geology*, 25/6, 547–550.
- Aytougoudal, M., Boiron, M.C., Cathelineau, M., 1996. Paléothermicité des calcaires de l'Est de la France: forage de la Haute Marne (Cirlfontaine-en-Ornois). Rapp. Andra, BRP 0CRE 96-005, pp. 48.
- Borradaile, G.J., Henry, B., 1997. Tectonic applications of magnetic susceptibility and its anisotropy. *Earth Sci. Rev.* 42, 49–93.
- Butler, R.F., 1998. Paleomagnetism: Magnetic Domains to Geologic Terranes, University of Arizona, Tucson, Arizona, 238 pp. Electronic Edition: Available from: <http://ns.geo.edu.ro/~paleomag/Teaching_materials.htm>.
- Chatzis, I., Dullien, F.A.L., 1981. Mercury porosimetry curves of sandstones. Mechanisms of mercury penetration and withdrawal. *Powder Technol.* 29, 117–125.
- Day, M., Parker, I.B., Bell, J., Fletcher, R., Duffie, J., Sing, K.S.W., Nicholson, D., 1994. Modelling of mercury intrusion and extrusion. In: Rouquerol, J., Rodriguez-Reinoso, F., Sing, K.S.W., Unger, K.K. (Eds.), *Characterization of porous media*, Studies in Surface Science and Catalysis, vol. 86. Elsevier, pp. 225–234.
- Dercourt, J., and Collaborators, 1985. Présentation des 9 cartes paléogéographiques au 1/20.000.000 s'étendant de l'Atlantique au Pamir pour la période du Lias à l'Actuel. *Bull. Soc. Géol. France* 8, 637–652.
- Ellwood, B.B., Ledbetter, M.T., 1979. Paleocurrent indicators in deep-sea sediment. *Science* 203, 1335–1337.
- Esteban, L., Bouchez, J.L., 2003. Etude de l'anisotropie structurale des argilites kimméridgiennes par des mesures de l'anisotropie de la susceptibilité magnétique. Rapport Andra, D CC AGEM 01-036.
- Esteban, L., Bouchez, J.L., Trouiller, A., 2006. The Callovo-Oxfordian argillites from Eastern Paris Basin: magnetic data and petrofabrics. *C. R. Geoscience* 338 (12–13), doi:10.1016/j.crte.2006.03.011.
- Esteban, M., Taberner, C., 2003. Secondary porosity development during late burial in carbonate reservoirs as a result of mixing and/or cooling of brines. *J. Geochem. Exploration*, 355–359.
- Gaucher, E., Robelin, C., Matray, J.M., Négrel, G., Gros, Y., Heitz, J.F., Vinsot, A., Rebours, H., Cassagnabère, A., Bouchet, A., 2004. ANDRA underground research laboratory: interpretation of the mineralogical and geochemical data acquired in the Callovo-Oxfordian formation by investigative drilling. *Phys. Chem. Earth*, 29, 55–77.
- Géraud, Y., Gaviglio, P., 2000. Reconstitution du réseau poreux d'un échantillon décomprimé: mise en évidence d'une anisotropie de connectivité. *C. R. Acad. Sci. Paris* 331, 339–344.
- Géraud, Y., Liewig, N., Raynaud, S., 2003. Location of porous volume used for transport and fluid-rock interaction by using mercury injection data. In: Hoteit, N., Su, K., Tijani, M., Shao, J.-F. (Eds.), *Hydromechanical and thermohydromechanical behaviour of deep argillaceous rock*, Theory and Experiments. Balkema publ., pp. 123–128.
- Hrouda, F., 1982. Magnetic anisotropy of rocks and its application in geology and geophysics. *Geophys. Surv.* 5, 37–82.
- Katsube, T.J., Percival, J.B., Hume, J.P., 1985. Characterization of a rock mass by pore structure parameters. 17^e Réunion sur le programme des déchets de combustibles nucléaires, vol. 2, Pinawa, Canada, pp. 375–413.
- Katz, A.J., Thompson, A.H., 1986. A quantitative prediction of permeability in porous rock. *Phys. Rev. B* 24, 8179–8181.
- Katz, A.J., Thompson, A.H., 1987. Prediction of rock electrical conductivity from mercury injection measurements. *J. Geophys. Res.* 92/B1, 599–607.
- Kloubek, J., 1994. Investigation of porous structures using mercury reintrusion and retention. *J. Colloid Interf. Sci.* 163 (1), 10–18.
- Landais, P., Elie, M., 1999. Utilisation de la géochimie organique pour la détermination du paléoenvironnement et de la paléothermicité dans le Callovo-Oxfordien du site de l'Est de la France. Actes des Journées Scientifiques CNRS/ANDRA, EDP Sciences Ed., Paris.
- Matthews, G.P., Moss, A.K., Spearing, M.C., Volland, F., 1993. Network calculation of mercury intrusion and absolute permeability in sandstone and other porous media. *Powder Technol.* 76, 95–107.
- Matthews, G.P., Ridgway, C.J., Spearing, M.C., 1995. Void space modeling of mercury intrusion hysteresis in sandstone, paper coating, and other porous media. *J. Colloid Interf. Sci.* 171, 8–27.
- Meng, B., 1994. Pore structure and moisture transport in sandstones: determination of relevant microstructural properties. In: Rouquerol, J., Rodriguez-Reinoso, F., Sing, K.S.W., Unger, K.K. (Eds.), *Characterization of Porous Solid III*, Studies Surface Science Catalysis, vol. 87. Elsevier publ., pp. 771–780.
- Northon, D., Knapp, R., 1977. Transport phenomena in hydrothermal systems: the nature of porosity. *Am. J. Sci.* 277, 913–936.
- Northon, D., Knight, J., 1977. Transport phenomena in hydrothermal systems: cooling plutons. *Am. J. Sci.* 277, 937–981.
- Pellenard, P., Deconinck, J.F., Marchand, D., Thierry, J., Fortwengler, D., Vigneron, G., 1999. Contrôle géodynamique de la sédimentation argileuse du Callovo-Oxfordien moyen dans l'Est du bassin de Paris: influence eustatique et volcanique. *C. R. Acad. Sci. Paris* 328, 807–813.
- Pellenard, P., 2003. Message terrigène et influences volcaniques au Callovo-oxfordien dans les bassins de Paris et du Sud-Est de la France. Société Géologique du Nord, Lille, vol. 31, pp. 362.
- Pellerin, F.M., 1980. La porosité au mercure appliquée à l'étude géotechnique des sols et des roches. *Bull. Liaison Lab. Ponts et Chaussées*, vol. 106, pp. 105–116.
- Surma, F., Géraud, Y., 2003. Porosity and thermal conductivity of the Soultz-sous-Forêts granite. *PAGEOPH* 160, 1125–1136.
- Van Brakel, J., 1975. Pore space models for transport phenomena in porous media: review and evaluation with special emphasis on capillary liquid transport. *Powder Technol.* 11, 205–236.



ARTICLE IN PRESS

L. Esteban et al. / Physics and Chemistry of the Earth xxx (2006) xxx–xxx

9

- Van Geet, M., Bastiaens, W., Maes, N., Weetjens, E., Volekaert, G., Gens, A., Villar, M.V., Filippi, M., Imbert, Ch., Plas, F., 2005. A large scale in-situ demonstration test for repository sealing in an argillaceous host rock – the RESEAL project. In: Tours 2nd International Andra conference: Clays in Natural & Engineered Barriers for Radioactive Waste Confinement. Session 15B- HM parameters acquisition and modelling.
- Wardlaw, N.C., Taylor, R.P., 1976. Mercury capillary pressure curves and the interpretation of pore structure and capillary behavior in reservoir rocks. *Bull. Can. Petrol. Geol.* 24/2, 225–262.
- Wardlaw, N.C., 1976. Pore geometry of carbonate rocks as revealed by pore casts and capillary pressure. *Am. Assoc. Petrol. Geologists Bull.* 60/2, 245–257.
- Wardlaw, N.C., McKellar, M., 1981. Mercury porosimetry and the interpretation of pore geometry in sedimentary rocks and artificial models. *Powder Technol.* 29, 127–143.
- Wardlaw, N.C., Li, Y., Forbes, D., 1987. Pore-throat size correlation from capillary pressure curves. *Transport Porous Media* 2, 597–614.
- Xu, K., Daian, J.-F., Quenard, D., 1997a. Multiscale structures to describe porous media part I: theoretical background and invasion by fluids. *Transport Porous Media* 26, 51–73.
- Xu, K., Daian, J.-F., Quenard, D., 1997b. Multiscale structures to describe porous media part II: transport properties and application to test materials. *Transport Porous Media* 26, 319–338.

Please cite this article in press as: Esteban, L. et al., Pore network connectivity anisotropy in Jurassic argillite ..., *J. Phys. Chem. Earth* (2006), doi:10.1016/j.pce.2005.11.001

5.4. Données sur l'ensemble des forages

Deux forages, EST205 et EST211, ont fait l'objet d'une analyse systématique. Pour le sondage EST211 nous avons présenté les données d'anisotropie de connectivité du réseau poreux mesurées par injection de mercure et le lien que l'on peut trouver avec les paramètres magnétiques mesurés sur les mêmes échantillons.

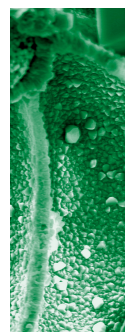
5.4.1. Résultats par injection au mercure dans le forage EST211

Les mesures d'anisotropie de la connectivité du réseau poreux par injection au mercure ont été appliquées sur des échantillons prélevés dans chaque lithologie repérée par l'Andra et caractérisée par méthode magnétique (Tableau V.2).

La porosité maximale correspond aux mesures obtenues à la pression maximale d'injection, qui correspond à un diamètre de pores de $0,0042 \mu\text{m}$. Les valeurs de porosité les plus importantes, autour de 20%, sont associées aux lithologies les plus argileuses (Tableau V.2 et Fig. V. 10). Les valeurs les plus faibles sont, elles, associées aux niveaux les plus carbonatés, à l'exception du tronçon 15938 qui possède des porosités de l'ordre de 30% liées à de nombreuses microfractures.

Lorsqu'on compare les porosités obtenues sur les échantillons non recouverts et les mesures d'intensité magnétique, en particulier l'ARN et K, il ressort que la porosité totale maximale (Fig. V.10a) diminue avec K qui peut être lié à la quantité d'argile. Inversement l'ARN augmente avec la porosité, ce paramètre magnétique peut être relié à la quantité de silt. Si on analyse les données en fonction de l'orientation en comparant ces mêmes paramètres magnétiques avec les valeurs de porosité mesurées selon les axes d'ASM, les relations définies précédemment ne sont pas systématiquement observées. Ainsi on constate que la porosité augmente en fonction de l'ARN selon les axes K1 et K2, donc dans le plan de litage (Fig. V.10b), et que la porosité selon l'axe K3, ne présente pas de distribution particulière. Les mêmes comparaisons en fonction de la susceptibilité magnétique (Fig. V.10c) montrent une diminution de la porosité mesurée selon l'axe K1 (i.e. organisation des argiles) lorsque la valeur de K1 augmente alors que selon K2, la porosité augmente avec la valeur de K2. La distribution de la porosité mesurée selon l'axe K3 ne présente pas de caractère particulier en fonction de l'intensité de K3. Les paramètres de porosité sont donc clairement fonction de la lithologie mais ils dépendent également de l'orientation des particules composant le matériau.

Le seuil de percolation est défini comme le diamètre d'accès correspondant au point d'inflexion de la courbe d'intrusion de mercure. Il est considéré comme le diamètre à partir duquel le mercure forme un réseau continu au travers de l'échantillon d'après les modèles de percolation (Katz et Thompson, 1986). On constate ainsi que les niveaux les plus argileux possèdent les diamètres de pores les plus importants (autour de $0,0242 \mu\text{m}$) alors que les niveaux plus silteux ont des seuils d'accès autour de $0,0117 \mu\text{m}$ (Tableau V.2 et Fig. V.11). Les niveaux carbonatés, sauf 15938, ont des seuils d'accès encore plus petits, autour de $0,0063 \mu\text{m}$, liés peut-être à des recristallisations secondaires qui viennent diminuer la taille des vides.



Specimens	Porosité maximum (%)	Diamètre pores maximum (μm)	Porosité piégée (%)	Diamètre de la porosité piégée (μm)	% piégeage	Diamètre des pores d'accès (μm)
11802-K1	6,9	0,0042	0,4	0,174	6	0,0063
11802-K2	9,5	0,0042	0,4	0,174	4	0,0063
11802-K3	8,0	0,0042	1,4	0,1742	18	0,0117
11802-Total	12,7	0,0042	5,6	0,1739	44	0,0084
11809-K1	17,4	0,0042	7,3	0,1739	42	0,0117
11809-K2	18,5	0,0042	5,3	0,174	29	0,0117
11809-K3	3,3	0,0042	0,7	0,09	20	0,0063
11809-Total	20,3	0,0042	4,2	0,1743	21	0,0241
11815-K1	18,5	0,0042	3,9	0,256	21	0,0117
11815-K2	18,4	0,0042	3,8	0,35	21	0,0175
11815-K3	15,1	0,0042	4,1	0,26	27	0,0117
11815-Total	21,9	0,0042	2,1	0,498	10	0,0083
11828-K1	20,7	0,0042	9,2	0,0174	44	0,0063
11828-K2	9,5	0,0042	1,0	0,0451	10	0,0063
11828-K3	16,2	0,0042	0,9	0,0174	6	0,0083
15309-K1	12,0	0,0062	6,8	0,267	57	0,0242
15309-K2	13,9	0,0062	7,7	0,358	55	0,0242
15309-K3	14,2	0,0062	10,1	0,99	71	0,0242
15309-Total	15,0	0,0062	8,7	0,1743	58	0,0452
15319-K1	16,4	0,0046	3,6	0,259	22	0,0242
15319-K2	10,8	0,0062	6,3	0,358	58	0,0242
15319-K3	9,8	0,0062	6,5	0,1754	66	0,0242
15319-Total	17,4	0,0046	4,9	0,351	28	0,0242
15348-K1	16,0	0,0042	8,9	0,714	55	0,0242
15348-K2	18,9	0,0042	9,8	0,353	52	0,0242
15348-K3	10,2	0,0062	6,3	0,1754	62	0,0242
15419-K1	11,8	0,0042	4,0	0,358	34	0,0241
15419-K2	13,1	0,0042	4,8	0,1748	37	0,0241
15419-K3	9,7	0,0042	1,4	0,1745	14	0,0241
15419-Total	11,1	0,0062	6,3	0,268	57	0,0176
07822-K1	18,3	0,0046	5,6	0,1739	30	0,0117
07822-K2	19,1	0,0046	5,4	0,1743	28	0,0117
07822-K3	19,3	0,0046	5,7	0,1739	30	0,0117
15584-K1	20,1	0,0042	6,3	0,1747	31	0,0084
15584-K2	16,4	0,0042	6,3	0,1747	38	0,0117
15584-K3	20,2	0,0042	2,2	0,1735	11	0,0117
15610-K1	13,1	0,0042	5,2	0,1724	39	0,0117
15610-K2	13,6	0,0042	5,0	0,1739	37	0,0175
15610-K3	8,8	0,0042	3,2	0,2727	36	0,0117
15610-Total	14,8	0,0042	1,3	0,1749	9	0,0117
15665-K1	8,7	0,0042	1,1	0,1733	13	0,0117
15665-K2	12,9	0,0042	1,1	0,1733	9	0,0174
15665-K3	12,4	0,0042	5,9	0,1754	47	0,0117
15665-Total	8,8	0,0042	1,5	0,1744	17	0,0117
15853-K1	18,5	0,0042	4,4	0,1739	24	0,0062
15853-K2	27,0	0,0042	5,0	0,1754	19	0,0063
15853-K3	19,6	0,0042	4,4	0,1739	22	0,0063
15938-K1	30,6	0,0042	3,7	0,7149	12	0,0117
15938-K2	28,2	0,0042	5,0	0,35	18	0,0117
15938-K3	30,5	0,0042	5,3	0,1744	17	0,0117
15938-Total	34,6	0,0042	5,3	0,1744	15	0,0117

Tableau V.2: Données des mesures d'anisotropie de la connectivité du réseau poreux par méthode d'injection au mercure pour des échantillons prélevés le long du forage EST211. Les valeurs K1, K2 et K3 correspondent aux mesures le long des axes d'ASM et la valeur "Total" correspond à la mesure sur échantillon non recouvert de résine.

5 – Apports de la pétrophysique dans les argilites

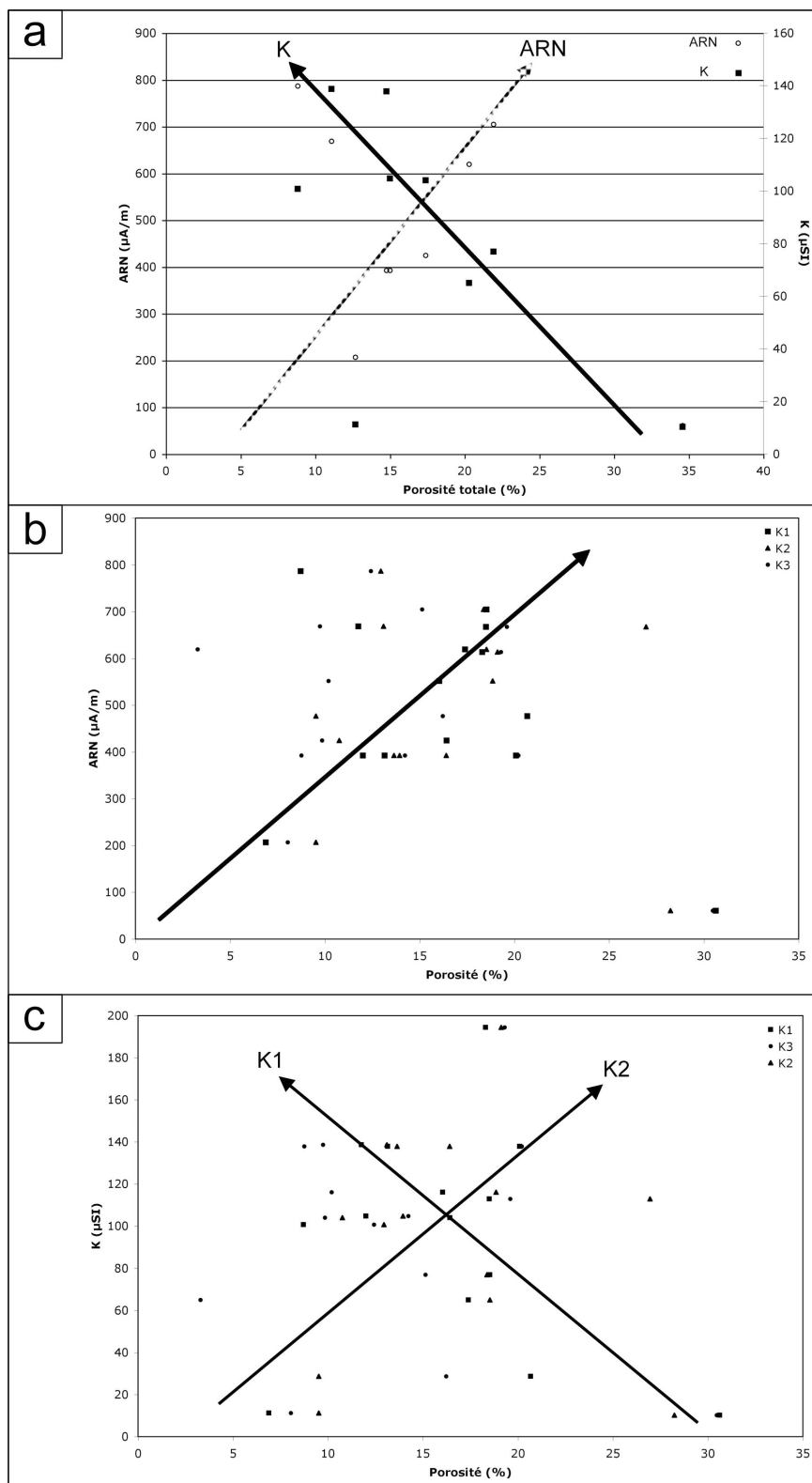
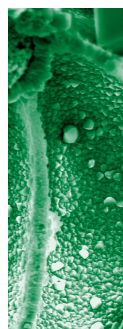


Figure V.10: Evolution des paramètres de porosité en fonction des intensités de la rémanence magnétique naturelle (ARN) et de la susceptibilité (K) dans le forage EST211. Evolution de la porosité maximale mesurée sur des échantillons non préparé en fonction de l'ARN et de K (a); Evolution de la porosité maximum selon les axes d'ASM (K_1 , K_2 et K_3) en fonction de l'ARN (b) et en fonction de K (c).



Enfin, la porosité piégée est calculée à partir des courbes de retrait-injection qui mesure la quantité de mercure qui est restée "bloquée" dans le réseau poreux au cours de la diminution de la pression jusqu'à la pression atmosphérique.

Les courbes de ré-injection permettent notamment de vérifier s'il n'y a pas eu de fracturation lors de la montée en pression du mercure. L'absence de fracturation est indiquée par le fait que la porosité avant retrait doit être retrouvée lors de la ré-injection pour la même pression appliquée. Il ressort que les diamètres des pores d'accès de la porosité piégée est autour de 0,17 μm quelque soit la nature de la lithologie (Tableau V.2). Par contre, la porosité piégée et donc le pourcentage de piégeage de mercure, semble augmenter lorsque la taille des diamètres d'accès du réseau augmente, ou lorsque la quantité d'argile augmente (Tableau V.2 et Fig. V.11). Alors que la géométrie des pores est plus simple et que le piégeage est plus faible lorsque les échantillons sont cimentés par de la calcite, le réseau poreux est plus complexe et provoque le piégeage du mercure lorsque les argiles sont l'élément dominant du matériau.

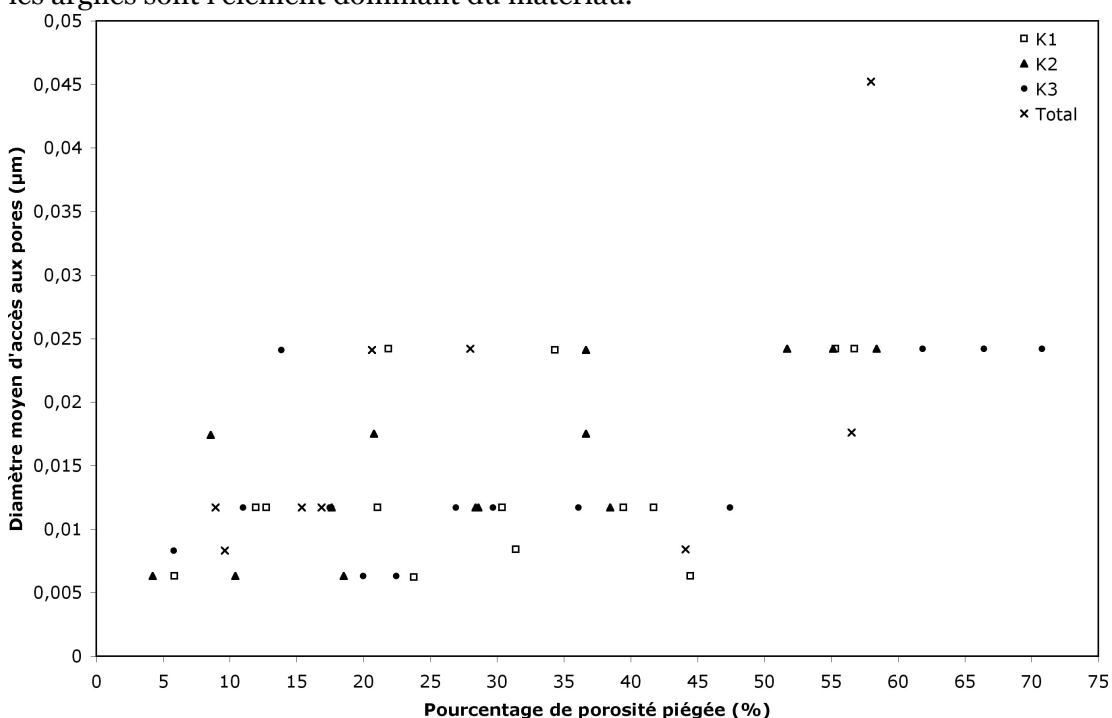


Figure V.11: Evolution des diamètres d'accès au réseau poreux en fonction du pourcentage de porosité piégée, selon les trois axes d'ASM (K1, K2 et K3) et pour les échantillons non préparés (Total), dans le forage EST211.

D'un point de vue anisotrope, les paramètres de porosité mesurés selon les axes d'ASM sur l'ensemble des échantillons confirment les hypothèses présentées dans les articles précédents. Les niveaux plus argileux (lithologies 5, 6, 7, 8 et base du 3) ont des porosités mesurées selon K3 plus faibles que les porosités mesurées selon les axes K1 et K2 ce qui montrent que le mercure circule plus facilement dans le plan de litage (Fig. V.13). Dans ce plan, une anisotropie peut s'enregistrer avec une porosité plus importante selon l'axe K1, soit une circulation "facilité" selon l'axe K1 donc selon l'organisation des argiles dans le plan de litage. Dans les niveaux plus silteux (lithologie 3, partie supérieure), la porosité selon l'axe K3 est cette fois plus importante que dans le plan de litage montrant que le drainage se fait selon des chemins sub-verticaux. On peut noter que les diamètres d'accès aux pores semblent plus importants selon l'axe K3 lorsque le taux de carbonaté augmente pouvant souligner une recristallisation préférentielle des carbonates dans le plan de litage. L'anisotropie des diamètres d'accès n'est pas mesurable dans les autres types de lithologie.

5 – Apports de la pétrophysique dans les argilites

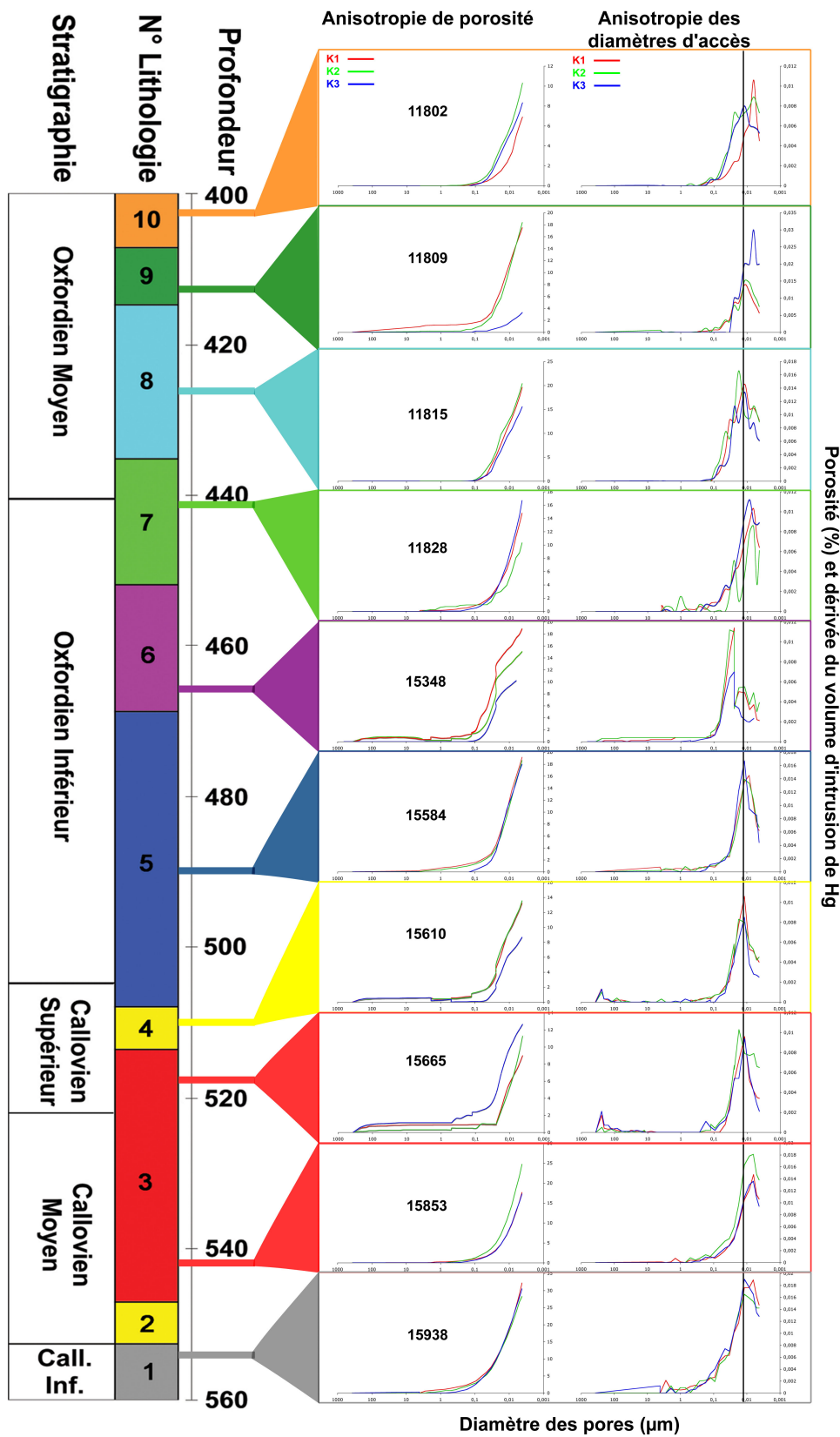


Figure V.13: Synthèse des mesures d'anisotropie de la connectivité de la porosité associées aux diamètres d'accès aux pores pour des échantillons prélevés dans les différentes lithologies (1 à 10) du forage incliné EST211. Les courbes rouges correspondant aux mesures selon l'axe d'ASM K1, la courbe verte selon l'axe K2 de l'ASM et enfin la courbe bleue selon l'axe vertical K3 de l'ASM.

5.4.2. Résultats des essais d'injection au mercure dans le forage EST205

L'anisotropie de connectivité du réseau poreux le long du forage EST205 (proche du site) est mesurée de la base de l'Oxfordien inférieur au Kimméridgien supérieur. Contrairement au forage incliné EST211, les porosités ont été mesurées sur échantillon non préparé et sur échantillons prélevés selon l'axe vertical et selon un axe horizontal pris dans une direction quelconque puis recouvert de résine (Fig. V.14a).

Les niveaux les plus argileux sont comme pour le forage EST211 les plus poreux (autour de 20%). On note que les argiles noires de l'Oxfordien inférieur se marquent par une chute importante de la porosité avec des valeurs de l'ordre de 5%. Dans ces niveaux faiblement poreux, on peut noter une faible anisotropie entre l'axe vertical et l'axe horizontal avec des valeurs mesurées selon d'axe vertical supérieures à celles mesurées selon l'axe horizontal. Les niveaux plus carbonatés montrent que le drainage s'effectue préférentiellement dans le plan de litage (avec la porosité horizontale > porosité verticale) et une porosité moyenne de l'ordre de 12%.

Les diamètres d'accès aux pores (Fig. 14b) ne présentent pas d'anisotropie particulière, les niveaux argileux possèdent des diamètres d'accès légèrement moins important que les niveaux plus marneux. Les niveaux carbonatés ont des diamètres de pores identiques à ceux des niveaux argileux autour de 0,02 μm . On note que le niveau du maximum d'argilosité de la formation du Callovo-Oxfordien (base de l'Oxfordien moyen) possède les plus grands diamètres d'accès, autour de 0,15 μm , pour des porosités de l'ordre de 10%.

Les données sont synthétisées sur la figure V.14 et permettent notamment d'identifier les niveaux anisotropes qui présentent des écarts importants entre la valeur de porosité mesurée sur échantillons non recouverts et celle obtenue sur les échantillons partiellement recouverts de résine. Ces échantillons sont notamment ceux du haut de la série des argiles noires de l'Oxfordien inférieur et le niveau de marne de l'Oxfordien supérieur et du Kimméridgien inférieur. Localement, des « zones » anisotropes peuvent être identifiées avec les calcaires « grainstones » de l'Oxfordien moyen par exemple. Inversement des « zones » isotropes sont identifiables avec l'Oxfordien carbonaté supérieur et moyen ainsi que la moitié inférieure de l'Oxfordien inférieur. Concernant les seuils d'accès, il est important de noter que les formations comprises entre les marnes noires de l'Oxfordien inférieur et le Kimméridgien inférieur est caractérisé par des valeurs très faibles de seuils d'accès. Ces valeurs sont constantes tout au long de la série sauf au niveau des calcaires mudstones de l'Oxfordien supérieur où elles augmentent. De part et d'autre de cette série, les valeurs augmentent de quasi un ordre de grandeur.

5 – Apports de la pétrophysique dans les argilites

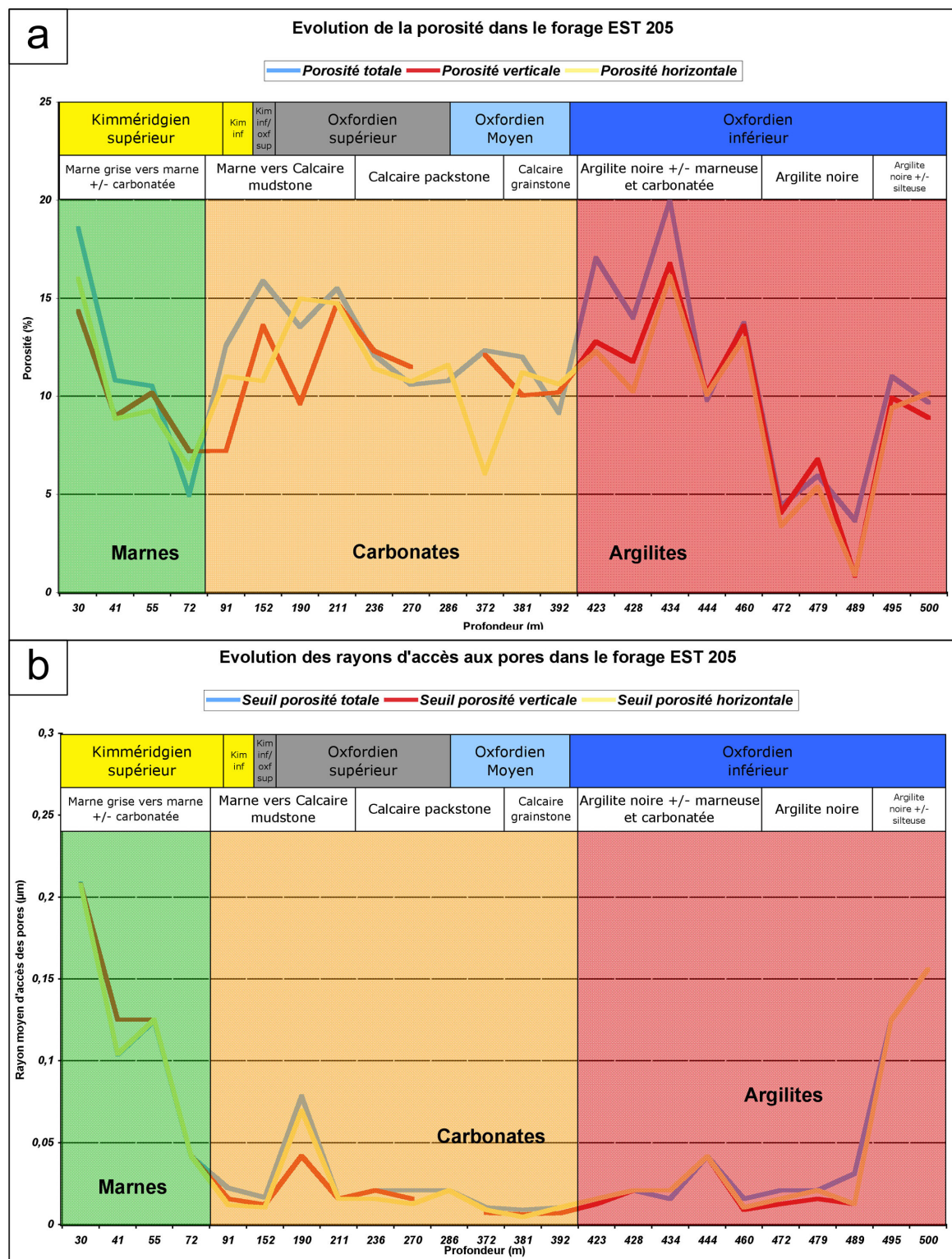


Figure V.14: Evolution de la porosité et des diamètres d'accès aux réseaux poreux le long du forage EST205. Anisotropie de la connectivité de la porosité du réseau poreux selon l'axe horizontal et vertical et sur échantillons non recouvert (Total) (a); anisotropie des diamètres d'accès des pores selon l'axe horizontal et vertical et sur échantillon no recouvert (total) (b).

5.5 Accès à l'anisotropie de la connectivité par injection au ferrofluide

En parallèle à la méthode d'injection orientée de mercure qui donne une information sur l'anisotropie de connectivité, nous avons développé un dispositif d'injection hydrostatique sous haute pression de ferrofluide pour tenter de mesurer un tenseur d'anisotropie de forme du réseau poreux et ainsi obtenir des informations sur la forme des éléments qui composent le réseau poreux et sur l'orientation moyenne de ces éléments.

5.5.1 Définition du ferrofluide

Le ferrofluide, ou liquide magnétique, est une solution colloïdale stable de nano particules de magnétite (~15 nm) en suspension dans un solvant de type parafine dans notre cas (référence du ferrofluide WHJS1-B). Ce liquide noir et opaque (très polluant magnétiquement) a de fortes propriétés magnétiques: sous l'action d'un champ magnétique, ce liquide s'aimante fortement.

Les ferrofluides, n'existant pas à l'état naturel, ont été synthétisés pour la première fois par Wilson en 1779 (Cf. références de Wolhfarth, 1982). Le fluide y était formé d'une suspension de fines particules de fer dans de l'eau. Par la suite de nombreuses expériences ont affiné les méthodes de fabrication et c'est en 1963 que Papell, de la NASA, synthétisa l'un des premiers ferrofluides modernes. Ensuite Rosensweig (1985), en collaboration avec les chercheurs d'Avco Corp., améliora ce fluide et analysa les principes physiques qui régissent ses propriétés micro- et macroscopiques, fondant une nouvelle branche de l'hydrodynamique : la ferrohydrodynamique dont les questions de l'hydrodynamique des fluides magnétiques sont exposés dans le livre de Landau and Lifshitz (1982). Dans la monographie de Rosensweig, il considère les questions de synthèse des ferrofluides, de lévitation dans des ferrofluides, la stabilité de la surface, les effet magnétovisqueux, la thermodynamique des colloïdes magnétiques, le mouvement des systèmes biphasés magnétiques. Beaucoup d'autres problèmes liés à la physique des ferrofluides et leurs applications techniques et médicales sont traités plus en détails dans *Magnetic Fluids and Applications Handbook* (1996). Aujourd'hui les chercheurs s'attèlent à synthétiser des fluides magnétiques toujours plus performant pour des applications principalement industrielles (Hi-Fi; séparation par flottaison, joints tournants ...) et médicales (anticorps dirigés, réparation cellulaire...).

Les particules d'un ferrofluide colloïdal, où chacune porte un moment magnétique, sont similaires aux molécules d'un gaz paramagnétique. En l'absence de champ appliqué, les particules sont orientées aléatoirement et l'aimantation totale du fluide est nulle. Lorsqu'un champ magnétique est appliqué, les moments dipolaires tendent à s'aligner avec le champ dont une partie est compensée par l'agitation thermique détruisant l'aimantation. Dans la mesure où les interactions magnétiques entre les particules sont négligées (pas de ferromagnétisme), la théorie de Langevin décrivant l'aimantation du fluide en fonction du champ est vérifiée. L'aimantation à saturation d'un ferrofluide est égale, à la dilution près, à celle du matériau qui compose ses particules. Mais la susceptibilité magnétique sous champ presque nul prend, pour ces matériaux, une valeur inhabituelle. En effet, elle est environ 1000 fois plus grande que celle des liquides paramagnétiques comme le FeCl_3 : l'on parle alors de superparamagnétisme.

Si pour le mercure, les calculs de tension de surface et angle de contact sont aisés, il en est tout autrement pour les ferrofluides. L'aimantation de ce fluide génère des sauts de tension de surface et des forces capillaires complexes et décrite par l'équation (Bashtovoi et al., 1985):

$$[p] = \sigma.k - (1/2).\mu_0(M_{1n}^2 - M_{2n}^2),$$

avec σ - coefficient de tension superficielle,

k - courbure de la surface,

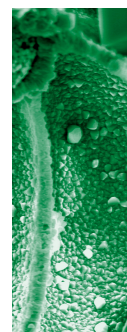
$\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7}$ Henry/m – perméabilité magnétique du vide,

M_n –composante, normale par rapport à la surface, de l'aimantation d'un fluide magnétique; les indices "1" et "2" correspondent aux fluides 1 et 2.

Cette équation permet de décrire un large spectre de phénomènes capillaires dans des ferrofluides, en particulier, la déformation de gouttes de ferrofluide libres sur une paroi; comprimées (Bashtovoi, 1996); l'instabilité de gouttes déposées... Les tensions de surface des ferrofluides sont généralement indépendante du champ magnétique extérieur sauf pour certains auteurs qui introduisent des aspects hydrostatiques et dynamiques de la surface du fluide (Golubyatnikov and Subkhankulov, 1986). En présence d'un faible champ magnétique homogène, des effets magnétiques sur le ferrofluide peuvent légèrement interagir avec les effets capillaires en milieu poreux (Cebers, 1987-b; Drozdova et al., 1990). Pradhan et Verma (1998) ont considéré théoriquement la dynamique de la pénétration des ferrofluides dans des milieux poreux en présence de forces capillaires et d'un champ inhomogène. Ils ont étudié l'effet de la force magnétique volumique sur la pénétration du ferrofluide mais pas l'effet capillaire sur le front du ferrofluide. Des études similaires ont été menées par Oldenburg et al. (2000) et Borglin et al. (2000). Ils ont considéré l'écoulement du ferrofluide avec des bords libres dans un milieu poreux mais sans regarder l'influence du champ sur la surface libre. Le problème du mouvement du ferrofluide dans un capillaire reste donc ouvert.

Les modèles physiques des fluides magnétiques proposent une approche de quasi-équilibre où l'aimantation du ferrofluide est homogène (Rosensweig, 1985). L'échange de moment angulaire entre le champ et le ferrofluide est absent, l'échange de quantité de mouvement est pris en considération par l'introduction de la force magnétique volumique $F_m = \mu_0 M \nabla H$ dans l'équation de Navier-Stokes. Ce modèle peut être appliqué pour décrire la dynamique des ferrofluides à particules magnétiques «molles» (pour lesquelles le moment magnétique peut se réorienter sans rotation de la particule). D'autres modèles existent sur les effets de relaxation et retard de rotation du couple magnétique sur une particule par rapport à la vitesse de rotation du champ.

Cette analyse bibliographique nous permet de souligner plusieurs problèmes liés aux écoulements de fluides magnétiques dans des capillaires et milieux poreux qui ont été peu ou pas étudiés. Tout d'abord il y a peu de résultats sur l'influence d'un champ magnétique homogène sur les processus de pénétration des ferrofluides dans des capillaires. Ensuite il n'existe pas non plus d'études complètes sur l'influence de l'orientation du champ sur l'écoulement d'un fluide magnétique dans des capillaires et milieux poreux. On ne sait pas encore si les écoulements de fluide magnétiques sont symétriques ou non dans des canaux plats et cylindriques en présence d'un champ plus ou moins incliné. La description théorique de l'écoulement du ferrofluide dans des milieux poreux est inexistante. Nous considérons donc que les paramètres de tension de surface et angle de contact sont inconnus dans le ferrofluide utilisé à cause des interactions avec les argilites et les effets capillaires du milieu poreux. Quelques données se rapprochant de notre ferrofluide sont proposés dans la thèse de Kuzhir (2003), Tableau V.3.



Fluide	Densité	Tension superficielle	Perméabilité magnétique initiale	Aimantation de saturation	Contrainte seuil dynamique ($H=0$)	Viscosité plastique ($H=0$)	Facteur C de la dépendance $\tau_B = C \cdot \mu_0 H^2$
	$\rho, \text{kg/m}^3$	$\sigma, \text{N/m}$	μ_i	$M_S, \text{kA/m}$	τ_B, Pa	$\eta_p, \text{Pa}\cdot\text{s}$	C
ferrofluide MK38	1273±1	0.0290± ±0.0002	2.70±0.08	38.2±1.2	0	0.0055± ±0.0003	0
ferrofluide MS30	1250±1	0.0300± ±0.0002	2.70±0.08	30.2±1.0	0	0.015± ±0.001	0
fluide MR CS30	2988±1	-	4.80±0.14 (2.50±0.08)	590±18 (575±17)	25±1	0.120± ±0.005	10.0± ±0.2
fluide MR MS30-C13	1370±1	-	2.40±0.08	25.8±1.0	1.50± 0.02	0.020± ±0.001	0.045± ±0.005
fluide MR MS30-C30	1540±1	-	1.93±0.08	22.0±1.0	2.45± 0.02	0.029± ±0.001	0.065± ±0.005

Tableau V.3: Données des paramètres magnétiques de ferrofluide et fluides magnétorhéologiques (MR). MK 38 et MS30 sont des ferrofluides de colloïdes de magnétites dans du Kérozène et de l'huile silicone 45V10 respectivement. Le fluide MR CS30 sont des particules de fer ex-carbonyle (OTE) dans de l'huile silicone 45V10, MS30-C13 et MS30-C30 sont des poudre de silice dans du ferrofluide MS30. MK38 est le ferrofluide qui se rapproche le plus de notre ferrofluide utilisé dans nos expériences.

5.5.2. Principe et méthode de l'injection au ferrofluide

5.5.2.1. Dispositif d'injection au ferrofluide

Le principe de l'injection au ferrofluide, repose sur le même principe que l'injection au mercure où la pression appliquée permet d'envahir le réseau poreux. La première et unique approche a été testée par Pfeleiderer (1994) sur des échantillons artificiels et des grés très poreux mais uniquement à basse pression. Nous nous proposons de tester cette approche sur des argilites peu perméables du Cox et à de très haute pression pour évaluer au mieux les différentes classes de pores et d'anisotropie.

Une cellule de haute pression expérimentale (Fig. V.15), raccordée à un contrôleur de pression et température et une pompe à vide, permet de faire le vide pour dégazer les échantillons. Une coupelle remplie de ferrofluide et séparée des échantillons est placée dans la cellule, cela permet de se dégazer en même temps que les échantillons. Mais le solvant du ferrofluide lorsqu'il est soumis au vide a tendance à dégazer continuellement. Le ferrofluide n'est donc jamais réellement dégazer. Un poignon relié au sommet de la cellule (Fig. V.15) permet de percer la coupelle lorsqu'il est actionné pour laisser le ferrofluide se répandre sur les échantillons tout en maintenant le vide. Une fois les échantillons noyés par le ferrofluide, la pression est progressivement appliquée avec un gaz neutre (argon) ou azote jusqu'à des pressions de 15 MPa maximum (Fig. V.15).

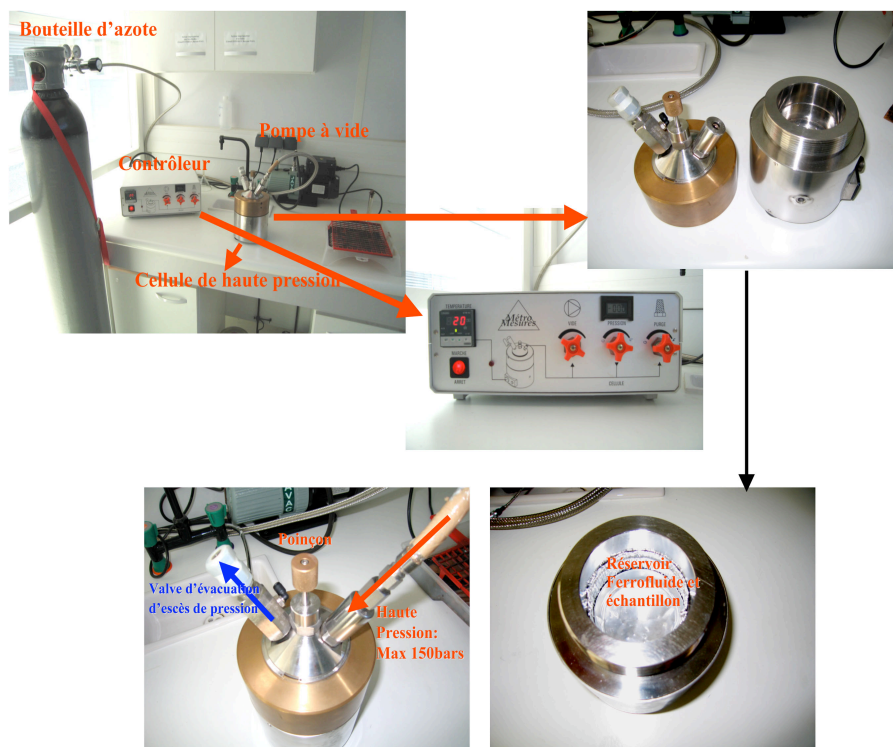
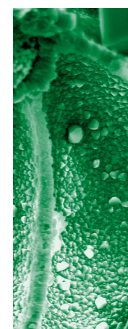


Figure V.15: Dispositif expérimental d'injection au ferrofluide.

5.5.2.2. Tests d'injection au ferrofluide

Des tests d'injection ont été effectués dans un premier temps avec des sachets plastiques remplis de ferrofluide et contenant un échantillon, pour éviter la pollution de la cellule par les ferrofluides. Mais les défauts de joint des sachets créés des fuites lors de la mise sous pression. Un autre test a été appliqué en mélangeant de la résine avec du ferrofluide pour, simultanément, indurer le roche et saturer ce dernier par du ferrofluide. L'induration permet d'éviter le retrait de ferrofluide injecté dans la roche après arrêt de la pression. Mais la résine crée une démixion avec le ferrofluide et l'empêche de polymériser. L'injection directe dans la cellule avec les échantillons noyés dans du ferrofluide s'est révélée, au final, le meilleur protocole. Ce dispositif permet seulement de monter à 15 MPa, nous avons donc continuer l'injection à plus haute pression au laboratoire de Strasbourg. Nous avons repris le même protocole de vide des échantillons que pour les injections au mercure sur le porosimètre. Nous avons ensuite créé un système extérieur de vannes et tubes isolés de l'air pour permettre l'intrusion du ferrofluide dans la canule sans casser le vide. Une fois la canule remplie de ferrofluide sous vide, elle a été soumise aux très haute pression du porosimètre jusqu'à 300 MPa.

Les échantillons imprégnés au ferrofluide ont été séchés sous hôte aspirante puis protégés par vaporisation d'un plastifiant puis emballés par plusieurs couches de papier cellophane et enfin revaporisés de plastifiant. Toutes ces protections, évitent de polluer définitivement les appareils de mesures magnétiques car les nanoparticules de ferrofluide sont électrostatique et se collent sur la surface des appareils de mesure. Les appareils sont alors inutilisables en cas de rupture de confinement. Les échantillons sont ensuite mesurés pour leur ASM au KLY-3.



L'objectif de ce type d'injection à haute pression est de "peindre" les bordures du réseau poreux avec le ferrofluide. La mesure ASM permet alors de mesurer l'anisotropie de forme et d'orientation des éléments qui forment ce réseau poreux saturé par les ferrofluides qui sont très magnétiques. On compare donc l'ASM avant et après différents paliers d'injection de ferrofluide pour comprendre l'anisotropie de forme du réseau poreux dans diverses classes de diamètres d'accès (i.e. différentes pressions appliquées) par rapport au signal supporté par les phases minérales.

5.5.3. Combinaison d'injection au mercure et au ferro-fluide avec l'ASM sur les argilites du Cox. Esteban, L., Géraud, Y. and Bouchez, J.L., in *Geophys. Res. Lett.*, Vol. 33, 18, L18311.

Titre: Géométrie du réseau poreux dans des argilites peu perméables par les données de la fabrique magnétique et les injections orientées au mercure. Pore network geometry in low permeability argillites from magnetic fabric data oriented mercury injections.

Résumé: La relation entre la fabrique minéralogique et l'anisotropie de la géométrie du réseau poreux est étudiée dans les lithologies argileuses représentatives de la formation du Callovo-Oxfordien (bassin Parisien, France), échantillonnées dans le forage incliné EST211.

Les comparaisons entre les mesures classiques de la fabrique magnétique (ASM) donnant l'organisation minéralogique avec les injections de mercure à haute pression parallèles aux axes d'ASM, reflètent la structure poreuse. Les mesures ASM après imprégnation avec un ferrofluide à différentes pressions, donnent la forme du réseau poreux permettant de proposer trois modèles de ce réseau. (1) Dans les niveaux plus silteux, les chemins de transferts sont contrôlés par des chemins verticaux. (2) Dans les niveaux plus carbonatés, le meilleur transfert est parallèle au litage et dans ce plan horizontal il est quasi-isotrope malgré une forme des pores anisotrope. (3) Dans les niveaux plus argileux, et plus particulièrement, au niveau du laboratoire du site Andra, les chemins de transferts sont aussi parallèles au litage et 20% plus important parallèlement aux deux paramètres que sont la linéation magnétique et l'orientation préférentielle de forme des pores.



Pore network geometry in low permeability argillites from magnetic fabric data and oriented mercury injections

Lionel Esteban,^{1,2,3} Yves Géraud,² and Jean Luc Bouchez¹

Received 18 May 2006; revised 3 July 2006; accepted 10 July 2006; published 26 September 2006.

[1] The relationship between mineral fabric and pore network geometry anisotropy is studied for representative clay-rich lithologies from the Callovo-Oxfordian formation of the Andra Laboratory (Paris Basin, France), sampled from the oblique borehole-core #EST211. Comparisons between standard magnetic fabric measurements (AMS) that give the mineral fabric, high pressure mercury injections parallel to the AMS axes, that reflect the pore structure parameter and AMS measurement after impregnation with a ferrofluid at different pressures, giving the shape of the pore networks, allow us to propose three pore models. (1) In the silt-enriched specimens the transfer pathway is found to be controlled by vertical pathways. (2) In the carbonate-enriched specimens the best transfer pathway is parallel to bedding, and in this plane is almost isotropic in spite of an anisotropic pore structure. (3) In the clay-enriched specimens, at the site of the Andra Laboratory, the transfer pathway is also parallel to bedding and $\sim 20\%$ higher parallel to both the magnetic lineation and the pore shape preferred orientation. **Citation:** Esteban, L., Y. Géraud, and J. L. Bouchez (2006), Pore network geometry in low permeability argillites from magnetic fabric data and oriented mercury injections, *Geophys. Res. Lett.*, 33, L18311, doi:10.1029/2006GL026908.

1. Introduction

[2] Mudrocks, as major constituents of sedimentary basins, have been proposed to host experimental sites for nuclear waste storage because of their extremely low permeability (down to 10^{-22} m^2 [Neuzil, 1994]) and high sealing ability. These intrinsic properties are controlled by interaction between rock microstructure, chemical interactions between mineral and fluid, and characteristics of permeating fluid [Hildenbrand and Urai, 2003]. Mudrock structure is controlled by the platy nature of the clay minerals that leads to permeability anisotropy, which arises from particle realignment during burial [Al-Tabbaa and Wood, 1987; Dewhurst et al., 1996; Yang and Aplin, 1998]. Horizontal to vertical permeability ratios between 1 to 3 have been measured in clay-rich materials subjected to low levels of stress [Tavenas et al., 1983; Leroueil et al., 1990], but these values are only loosely related to the

porosity. In their model, Yang and Aplin [1998] proposed to take into account a combination of porosity, average alignment of pores, pore shapes and pore throat sizes. They predicted a three-fold increase of the permeability anisotropy due to the decrease of the pore throat size at increasing confining pressure.

[3] The ~ 130 m thick, clay-rich formation of eastern Paris Basin, deposited during the Callovian and beginning of the Oxfordian, has been sampled from the oblique borehole #EST211 of the French radioactive waste management Agency (Andra; Figure 1). It gave us the opportunity to study the textural organization of rocks particularly well preserved from physico-chemical transformations. The anisotropy of magnetic susceptibility (AMS), which provides information on the orientation distribution of the magnetic minerals, is compared to the anisotropy of the pore network obtained by two high-pressure injection methods. The first one consists of mercury injection into three predetermined directions. The second consists of AMS measurements before and after impregnation with a ferrofluid under hydrostatic pressures. We hope to better understand the pore network organization and its relationship with the rock fabric elements. Pore connectivity and permeability anisotropy of shales is a key problem in assessing the reliability of underground storage of nuclear waste.

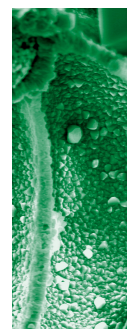
2. Samples

[4] The argillites under study are dark-coloured, subhorizontal clay-rich laminae finely interfingering with silt-enriching laminae, the whole displaying a very low permeability ($\sim 10^{-20} \text{ m}^2$ [Lavanchy and Distinguin, 2005]). 80 cylindrical samples of standard size (height 22 mm; diameter 25 mm), each one integrating a time span of $\sim 1000 \pm 300$ yrs, were collected from the borehole and studied for their pore network geometry. Three representative pairs of specimens from the three main lithologies (15665-A1 & A2, 15610-A1 & A2 and 15348-A1 & A2 in age-order) are presented in detail (Figure 1).

[5] Silt-enriching specimens from lithology 1 (#15665: 518 m) have a notable silt fraction (middle Callovian). Clay-enriched specimens from lithology 3 (#15348: 466 m) are the richest in clay (late Oxfordian). Finally, the carbonate-enriched specimens from lithology 2 (#15610: 510 m; late Callovian), have compositions in-between lithologies 1 and 3 [Gaucher et al., 2004].

3. Techniques

[6] Each specimen was subjected to a preliminary magnetic anisotropy measurement (AMS) using a KLY3 susceptometer (Agico Ltd) that yielded the orientation intensity



¹Laboratoire des Mécanismes et Transferts en Géologie/Centre National de la Recherche Scientifique UMR 5563, Groupement de Recherche en Formation Profonde, Université Paul-Sabatier, Toulouse, France.

²Ecole et Observatoire des Sciences de la Terre/Centre National de la Recherche Scientifique UMR 7516, Groupement de Recherche en Formation Profonde, Université Louis-Pasteur, Strasbourg, France.

³Andra, Châtenay-Malabry, France.

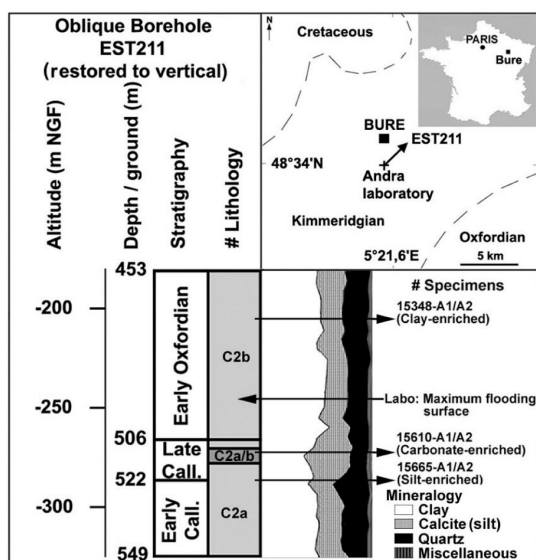


Figure 1. Location of the Andra Laboratory, and log with mineralogy distribution of the oblique drilling from which the three pairs of specimens were collected.

of the principal axes of the susceptibility ellipsoid, $K_1 \geq K_2 \geq K_3$ [Hrouda, 1982]. AMS is a quick non-destructive technique that provides the argillite mineral fabric, mainly carried by the clay minerals [Esteban et al., 2006]. Four parameters characterize the petrofabric: the anisotropy percentage $P\% = ([K_1/K_3] - 1) \times 100$, the planar and linear anisotropies $F\% = ([K_2/K_3] - 1) \times 100$ and $L\% = ([K_1/K_2] - 1) \times 100$, and the shape parameter of Jelinek [1977], $T = [LnF - LnL]/[LnL + LnF]$, comprised between $T = -1$ (prolate) and $T = +1$ (oblate).

[7] The A2 specimens were then cut into parallelepipeds according to the three principal AMS axes. Void volumes and their threshold diameters were measured using mercury injection tests (Micromeritics porosizer, Ltd) that determine the porous network geometry. These tests are based on the principle that a non-wetting fluid penetrates a void if the injection pressure is high enough to overcome capillary forces. For simple void shapes (tubes or cracks), the applied capillary pressure relates to the smallest dimension of the void [Walschburn, 1921], and also depends on the interfacial tension and the mercury wetting angle [Wardlaw and Yu, 1988]. To depict the void geometry along each AMS axis, the A2 specimens were epoxy-coated on sides parallel to the imposed mercury injection direction [Surma et al., 2003] which was applied at increasing pressures up to 300 MPa corresponding to equivalent pore radii of ~ 4 nm. Hg tests provide pore parameters (connected porosity, threshold distribution) that determine the permeability and its variation [Yang and Aplin, 1998].

[8] The A1 specimens were measured for their AMS after ferrofluid impregnation, which gives the anisotropy of the pore network, which can then be compared with the original mineral fabric [Pfleiderer and Halls, 1994]. The ferrofluid used is a non-wetting paraffin oil, that contains a suspension of superparamagnetic particles (~ 15 nm in average size, from Liquids Research Ltd) and surfactant that avoids clustering of the particles. The A1 specimens were impreg-

nated under a progressively increasing hydrostatic pressure (4, 8 and 14 MPa) which allows the fluid to reach pores of decreasing sizes. The pore network fabric given by the magnetic template of the connected porosity is compared with the original mineral fabric by the AMS measurements performed before and after impregnation.

4. Results

[9] The bulk magnetic susceptibility, $K_m = (K_1 + K_2 + K_3)/3$, ranges from 99 μSI for lithos. 1 (silt-enriched) and 2 (carbonate-enriched) to 115 μSI for litho. 3, the richest in clay (Table 1). The anisotropy percentage varies from $P\% = 0.6$ in litho. 2, to 3.2 in lithos. 1 and 3, values which are close to the planar anisotropy, around 0.6 and 2.9 respectively, underlining the high compaction of this material. As expected, the magnetic ellipsoids are highly oblate with T values always larger than 0.7, but it is noticeably less oblate in the carbonate-enriched litho. 2 ($T = 0.7-0.8$) than in the clay- and silt-enriched lithos. 1 and 3 ($T \sim 0.9$; Table 1). In addition, a faint linear anisotropy does exist in the foliation plane, with values as low as 0.05% in lithos. 2 and 3, but reaching 0.16% in litho. 1. After re-orientation with respect to the geographical reference frame (an easy operation in an inclined borehole with a horizontal foliation) this lineation is found to be rather constant within a given lithology, trending mainly NE-SW in the clay-rich litho. 3, and close to N-S in lithos. 2 and 1 [Esteban et al., 2006].

[10] In the silt-enriched specimens (litho. 1) the partial pore volume, measured along each ASM axis, varies by as much as one-third as a function of the orientation, with a maximum ($\sim 13\%$) parallel to K_3 (vertical) and a minimum ($\sim 9\%$) parallel to K_1 (magnetic lineation; Figure 2b). In the carbonate-rich specimens (litho. 2) the partial pore volume varies by about 20%, from more than 8% parallel to K_3 to more than 13% parallel to K_1 (Figure 2c). In the clay-enriched specimens (litho. 3) this pore volume it varies by almost a factor of two, reaching 10% parallel to K_3 and 19% parallel to K_1 (Figure 2d). In the bedding plane, a difference on the order of 20% is measured between K_1 and K_2 in both the silt- and clay-rich lithologies. By contrast, in the carbonate-rich litho. 2, no difference is observed within the bedding plane (Figure 2c). Finally, the pore threshold diameters, given by the pore sizes at the abrupt changes of slope of the saturation curves, are approximately twice as bigger in the clay-enriched litho. 3 (30 nm, Table 1) than in the carbonate- and silt-enriched lithologies (15 nm; Table 1).

[11] The silt-enriched specimens (litho. 1), impregnated with a ferrofluid at low pressure (4 MPa), have the highest values of the pore shape ratios, as measured by $P\%$, flattened almost perpendicular to bedding (Figure 3a and Table 1). At 8 MPa the pores become flattened parallel to bedding and their elongation is parallel to the magnetic lineation of this formation. At the maximum injection pressure (14 MPa) the pore flattening remains parallel to bedding and its elongation trends NE-SW, a direction similar to that of the clay-rich litho. 3 (Figure 3c). In the carbonate-enriched specimens (litho. 2), the pore network is flattened parallel to bedding and its flattening increases with increasing pressure (i.e. with decreasing pore sizes) hence weakening the E-W trending parallel-to-bedding anisotropy (Figure 3b). The clay-enriched specimens (litho. 3) display the highest increase

Table 1. AMS Data for Specimens A1 and A2 Giving Scalar and Directional Parameters (See Text)^a

Specimen	AMS Data										Ferrolfluid Injection Data (A1 Specimens)									
	Number	Km, μ SI	Pp %	Lp %	Fp %	T	K1 (Dec ^o /Inc ^o)	K3 (Dec ^o /Inc ^o)	Hg Injection Axis	Maximum Porosity, %	Threshold Diameter, μ m	Injection Pressure, MPa	Δ Km	Δ Pp	Δ Lp	K1, (Dec ^o /Inc ^o)	K3 (Dec ^o /Inc ^o)			
15665 Silt-	A1	99	3.1	0.16	2.97	0.9	172/0	233/90	K1	9	0.012	4	3.0	5.3	3.0	141/0	231/31			
	A2	101	3.2	0.13	2.94	0.92	169/1	235/88	K2	11.3	0.017	8	1.0	0.2	0.0	181/1	233/86			
15610 Carb-	A1	103	0.69	0.05	0.64	0.87	215/3	232/84	K3	12.6	0.012	14	1.0	1.1	3.8	248/3	235/87			
	A2	104	0.61	0.09	0.53	0.72	188/5	233/83	K1	13.2	0.012	4	3.5	330.2	180.9	260/2	221/87			
15348 Clay-	A1	114	2.97	0.07	2.9	0.95	214/0	229/88	K2	13.5	0.017	8	1.3	1.3	1.0	274/5	233/89			
	A2	115	2.79	0.06	2.73	0.95	223/0	234/88	K3	8.6	0.012	14	1.2	1.2	1.0	275/2	237/88			
								K1	15	0.024	4	10.7	5.9	3.1	240/0	236/90				
								K2	18.9	0.033	8	1.0	3.2	1.0	244/1	244/88				
								K3	10.2	0.024	14	1.2	1.5	0.7	231/1	233/89				

^aOriented mercury injection of specimens A2 giving porosities and threshold diameters parallel to the AMS principal directions. Ferrolfluid injection data giving variations of the magnetic parameters at 4, 8 and 14 MPa pressures. Δ : normalisation with respect to the previous experimental step.

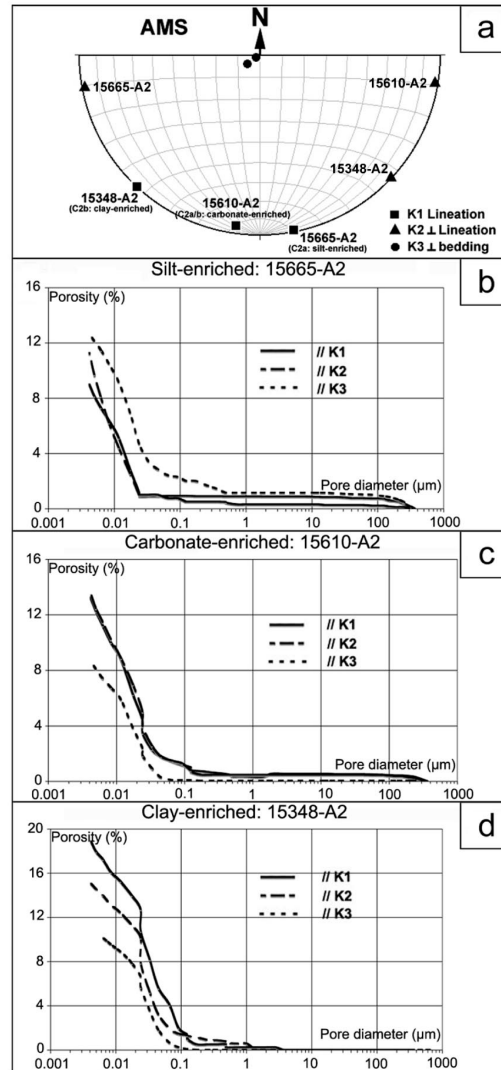
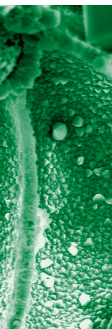


Figure 2. (a) AMS axes (K_1 , K_2 and K_3) in the geographic reference frame of the A2 specimens used for mercury injection. Connected pore volumes (%) versus threshold pore diameters (μ m) measured parallel to the principal magnetic axes: (b) 15665-A2: silt-enriched: highest pore parameters are vertical; (c) 15610-A2: carbonate-enriched: highest pore parameters within the bedding plane, and isotropic in this plane; and (d) 15348-A2: clay-enriched: highest pore parameters within the bedding and anisotropic in this plane.

in susceptibility, hence in connected porosity. Their pore network shows the same shape anisotropy parallel to NE-SW whatever the ferrolfluid pressure (Figure 3c). This implies that the pores tend to keep the same shape whatever their sizes, as strengthened by their T values, from 0.95 before ferrolfluid injection, to T = 0.74, 0.91 and 0.95 after injection at 4, 8 and 14 MPa respectively.

5. Discussion and Conclusion

[12] Lithology, particle orientations, porosity and pore size distribution do control the permeability and the anisot-



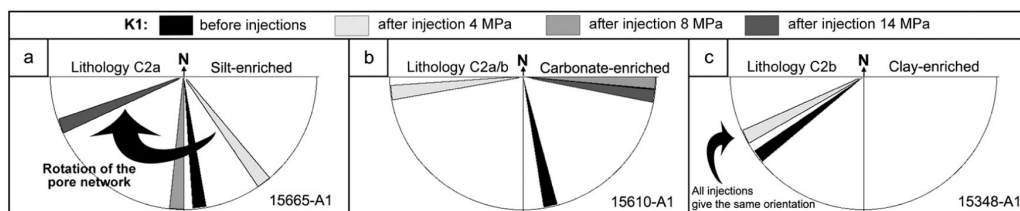


Figure 3. Rose diagrams (oriented with respect to north) of the K_1 magnetic axes (lineation) before (in black) and after impregnation with a ferrofluid at three different pressures (gray-tones) for the A1 specimens. (a) Silt-rich: at 4 MPa the magnetic plane is subvertical (K_3 close to horizontal) but K_1 remains horizontal. (b) Carbonate-rich: K_1 after impregnation is almost perpendicular to lineation before impregnation. (c) Clay-rich: K_1 does not change the impregnation pressure in spite of large variation in magnetic susceptibility.

ropy of mudstones [Yang and Aplin, 1998]. In this study, we document how particle orientation (AMS) and pore parameters, like pore shape (ferrofluid impregnation) and threshold values (mercury injection), are related. The magnetic fabric before impregnation reflects the mineral organization acquired during deposition and burial, i.e., clay minerals in case of the clay- and carbonate-enriched lithologies, and ferrimagnetic grains (mainly iron oxides) in addition to the clay minerals, for the silt-enriched lithologies. Depending on these lithological characters, three porous models are proposed.

[13] (1) The simplest model is represented by the carbonate-enriched lithology which has the lowest pore parameters in the vertical direction and similar values in the bedding plane. Surprisingly, as measured before ferrofluid injection, void elongations are perpendicular to K_1 . This agrees with the observed orientation of some calcite-filled micro-tension gashes. (2) The second model corresponds to the clay-enriched lithology where a remarkable agreement is observed between particle orientation, void shapes and pore parameters parallel to NE-SW within the bedding plane. In this model, the pore network mimics the mineral fabric and the better pathway is parallel to the lineation. In this lithology, the mineral lineation likely reflects a zone-axis organization of the clay minerals [Housen et al., 1993], giving micro-tubes whose axes are parallel to the currents [Ellwood and Ledbetter, 1979] or to the extension direction to which the sediment was subjected during compaction [Heling, 1970; Herbert, 1993]. (3) The silt-rich lithology has apparently the more complex network, pore sizes and their elongations varying according to the increase of mercury and ferrofluid injection pressures, respectively. At low pressures, the vertical axis has the largest pore diameters, the highest partial pore volume ($\sim 13\%$) and the highest pore shape anisotropy ($P = 17.5\%$ at 4 MPa). At the intermediate ferrofluid pressure (8 MPa) where smaller pores are reached, void elongations and shapes are close to N-S. This direction is parallel to the magnetic lineation measured before impregnation (Figure 3a), itself mainly carried by the silt fraction [Esteban et al., 2006]. At the maximum ferrofluid pressure (14 MPa), the smallest pores are reached and their elongation, NE-SW, is similar to that of the clay-rich lithology. We conclude that this lithology integrates three porous networks. The vertical network of the largest pores is tentatively attributed to dewatering during compaction. The two other networks likely relate to different mineral sizes, since (1) the largest pores

(deduced from AMS after impregnation) are elongate parallel to the silt lineation i.e. N-S (deduced from AMS before impregnation); and (2) the smallest pores are elongate parallel to the lineation measured in the clay-enriched lithology (NE-SW).

[14] In conclusion, high pressure injections using both mercury and a ferrofluid, combined with magnetic measurements help us to reveal the sedimentary conditions recorded by the pore network in very low permeability rocks. We have examined two key parameters, porosity and mineralogical content, that control fluid flow and sealing properties. Slight variations of these parameters may modify the fluid paths and hence influence the long term fluid flow. Our study is a prerequisite in modeling rock permeability, for example through an upscaling approach, from pore scale to core scale [Lock et al., 2004], among others [Matthews et al., 2006].

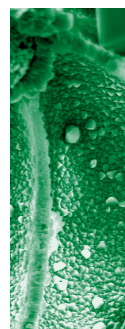
[15] **Acknowledgments.** L. Esteban thanks the Andra agency for his PhD fellowship. GdR FORPRO (CNRS) is acknowledged for financial support. R. Siqueira is thanked for his support in the rock magnetism laboratory. We also thank D. Lahondes, C. Aurière and H. Rebours for providing the samples from the core-storage, and A. Trouiller, B. Yven and P. Lebon for suggestions. This work is the GdR FORPRO contribution 2005/15A.

References

- Al-Tabbaa, A., and D. M. Wood (1987), Some measurements of the permeability of kaolin, *Geotechnique*, 37, 499–503.
- Dewhurst, D. N., K. M. Brown, M. B. Clennell, and G. K. Westbrook (1996), A comparison of the fabric and permeability anisotropy of consolidated and sheared silty clay, *Eng. Geol.*, 42, 253–267.
- Ellwood, B. B., and M. T. Ledbetter (1979), Paleocurrent indicators in deep-sea sediment, *Science*, 203, 1335–1337.
- Esteban, L., J. L. Bouchez, and A. Trouiller (2006), The Callovo-Oxfordian argillites from Eastern Paris basin: magnetic data and petrofabrics, *C. R. Acad. Sci. Paris*, in press.
- Gaucher, E., C. Robelin, J. M. Matray, G. Négrel, Y. Gros, J. F. Heitz, A. Vinsot, H. Rebours, A. Cassagnabère, and A. Bouchet (2004), Andra underground research laboratory: interpretation of the mineralogical and geochemical data acquired in the Callovo-Oxfordian formation by investigative drilling, *Phys. Chem. Earth*, 29, 55–77.
- Heling, D. (1970), Micro-fabrics of shales and their rearrangement by compaction, *Sedimentology*, 15, 247–260.
- Herbert, T. D. (1993), Differential compaction in lithified deep-sea sediments is not evidence for “diagenetic unmixing”, *Sed. Geol.*, 84(1–4), 115–122.
- Hildenbrand, A., and J. L. Urai (2003), Investigation of the morphology of pore space in mudstones—first results, *Mar. Petrol. Geol.*, 20, 1185–1200.
- Housen, B. A., C. Richter, and B. A. Van der Pluijm (1993), Composite magnetic anisotropy fabrics: experiments, numerical models and implications for the quantification of rock fabrics, *Tectonophysics*, 220(1–4), 1–12.

- Hrouda, F. (1982), Magnetic anisotropy of rocks and its application in geology and geophysics, *Geophys. Surv.*, 5, 37–82.
- Jelinek, V. (1977), The statistical theory of measuring anisotropy of magnetic susceptibility of rocks and its application, 88 pp., Geofysika, Brno, Czech Republic.
- Lavanchy, J. M., and M. Distinguin (2005), Determination of hydraulic properties of the Callovo-Oxfordian argillite at the Bure site: Synthesis of the results obtained in deep boreholes using several in-situ investigation techniques, paper presented at Clays in Natural and Engineered Barriers: 2nd International Meeting, Andra, Tours, France.
- Leroueil, S., G. Bouclin, F. Tavenas, L. Bergeron, and P. Rochelle (1990), Permeability anisotropy of natural clays as a function of strain, *Can. Geotech. J.*, 27, 568–579.
- Lock, P. A., X. D. Jiang, and R. W. Zimmerman (2004), Comparison of methods for upscaling permeability from the pore scale to the core scale, *J. Hydraul. Res.*, 42, 3–8.
- Matthews, G. P., C. F. Canonville, and A. K. Moss (2006), Use of a void network model to correlate porosity, mercury porosimetry, thin section, absolute permeability and NMR relaxation time data for sandstone rocks, *Phys. Rev. E*, 73, 031307.
- Neuzil, C. E. (1994), How permeable are clays and shales?, *Water Resour. Res.*, 30, 145–150.
- Pfleiderer, S., and H. C. Halls (1994), Magnetic pore fabric analysis: A rapid method for estimating permeability anisotropy, *Geophys. J. Int.*, 116, 39–45.
- Surma, F., et al. (2003), Microstructures d'un grès affecté par une faille normale: Anisotropie de connectivité et de perméabilité, *Bull. Soc. Géol. France*, 174(3), 295–303.
- Tavenas, F., et al. (1983), The permeability of natural soft clays. Part II: Permeability characteristics, *Can. Geotech. J.*, 20, 645–660.
- Walschburn, E. W. (1921), Note on a method of determining the distribution of pores sizes in a porous material, *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.*, 7, 115–116.
- Wardlaw, N. C., and L. Yu (1988), Fluid topology pore size and aspect ratio during imbibition, *Transp. Porous Med.*, 3, 17–34.
- Yang, Y., and A. C. Aplin (1998), Influence of lithology and compaction on the pore size distribution and modelled permeability of some mudstones from the Norwegian margin, *Mar. Petrol. Geol.*, 15, 143–175.

J. L. Bouchez and L. Esteban, LMTG/CNRS UMR 5563, GdR FORPRO, Université Paul-Sabatier, 14 Avenue E. Belin, F-31400 Toulouse, France. (esteban@lmtg.obs-mip.fr)
Y. Géraud, EOST/CNRS UMR 7516, GdR FORPRO, Université Louis-Pasteur, 1 rue Blessig, F-67084 Strasbourg, France.



5.5.4. Injection de ferrofluide sur l'ensemble du forage ES211

La méthode d'injection de ferrofluide décrite dans l'article précédent et dans le paragraphe 5.5.2 a été appliquée aux échantillons du forage EST211 (Tableau V.4). Notre objectif étant d'identifier les orientations de réseau liées aux structures sédimentaires, certains échantillons ont été enlevés du tableau car ils présentaient des fractures ou des caractères morphologiques susceptibles de perturber le signal et les interprétations de l'ASM après injection.

5.5.4.1. Données scalaires

Les variations des données scalaires de l'ASM après injection par rapport aux données avant injection permettent de visualiser le long du forage, et en fonction du découpage lithologique proposé par l'Andra, des zones aux caractéristiques particulières. Les variations de susceptibilité magnétique (ΔK_m) dans le forage EST211 (Fig. V.16a) indiquent la capacité du réseau poreux à être saturé par le ferrofluide et donc évaluent la porosité connectée. Elles montrent de fortes valeurs dans les lithologies argileuses (Lithologie 5; zone bleue) et au passage entre l'Oxfordien inférieur et moyen. Ces niveaux avaient déjà été repérés d'après les méthodes d'injection au mercure comme plus poreuse que les autres lithologies. Les niveaux très carbonatés (lithologies 1 et 10; zones blanche C1 et orange clair C3b) présentent les plus fortes variations de K_m et donc les plus fortes porosités qui sont liées à une forte microfracturation. L'augmentation des pressions ne semble pas permettre de saturer une porosité de plus petits seuils d'accès (soit que cette porosité n'existe pas, soit que la pression appliquée soit insuffisante), sauf dans la partie supérieure de la lithologie argileuse 5 (zone bleue) où la variation liée à l'injection sous 70 MPa est cinquante fois plus forte que l'injection à 14 MPa. Les zones plus silteuses (lithologies 3, C2a et 7, C2d) ont de très faibles variations qui montrent que le ferrofluide est entré en plus faible quantité (30 fois moins) que dans les niveaux plus argileux. La nature de la lithologie est donc un facteur décisif sur la capacité à saturer le réseau poreux par le ferrofluide, caractère qui a été montré avec la méthode au mercure.

Les paramètres scalaires du degré d'anisotropie (ΔP_p) et du taux de linéation (ΔL_p) ont aussi été comparés avant et après injection (Fig. V.16b&c). On retrouve ainsi les mêmes tendances de variation que pour ΔK_m avec une augmentation de ces paramètres dans les niveaux plus argileux. On remarque par ailleurs, une diminution progressive de ΔP_p à la faveur de ΔL_p à partir de la lithologie 4 jusqu'à la lithologie 10. Le grand pic de ΔP_p et ΔL_p juste après la lithologie 4 concerne des échantillons présentant un filon de pyrite.

Des injections pour les différents types de lithologies ont été effectuées directement à 14 bars, sans palier de pression inférieur. Les valeurs obtenues sont comparables à celles obtenues à la même pression pour des échantillons testés par paliers successifs. Ainsi, les mises en pression par palier successifs n'influencent en rien le signal magnétique et l'organisation structurale.

5 – Apports de la pétrophysique dans les argilites

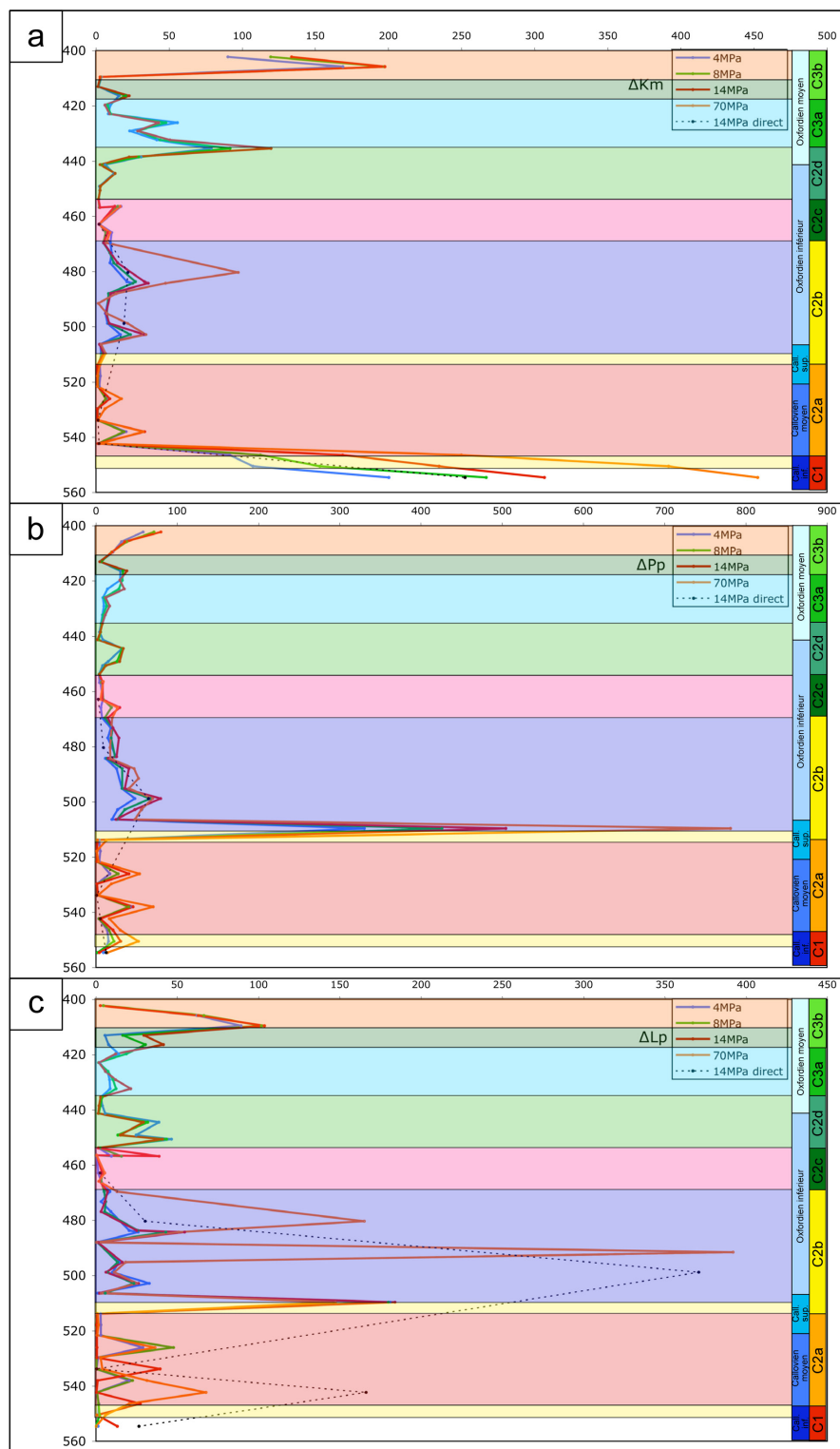


Figure V.16: Evolution au sein du forage EST211 des variations de paramètres scalaires de l'ASM après injection de ferrofluide sous différentes pressions. La susceptibilité magnétique moyenne (Km) après injection est comparée avec celle avant injection (a); le degré d'anisotropie (Pp) après injection est comparé aussi avec les mesures avant injection (b) tout comme le degré d'anisotropie linéaire (Lp) (c). La courbe bleue correspond aux valeurs obtenues pour des pressions d'injection de ferrofluide de 4 MPa; la courbe verte à celles obtenues pour des pressions de 8 MPa; la courbe rouge à celles obtenues pour des pressions 14 MPa; la courbe orange à celles obtenues pour des pressions 70 MPa et enfin la courbe noire en pointillé correspond aux échantillons imprégnés de ferrofluide sous 14 MPa directement.

5.5.4.2. Données vectorielles

Les conclusions exposées dans l'article précédent (GRL) peuvent être généralisées aux données acquises sur l'ensemble du forage. Les argiles ont un axe K₃ après injection identique à celui avant injection et orienté perpendiculairement au plan de litage, soulignant la forte foliation de ces niveaux et des chemins de percolation des fluides dans le plan de litage (Fig. V.17a). Dans ce plan, les axes K₁ montrent après injection les mêmes orientations que celles avant injection, interprétées comme étant le reflet de l'organisation des plaquettes d'argiles qui s'appuient autour de cette direction. L'orientation des structures qui forment la porosité est comparable à celle des minéraux argileux. Ainsi le réseau poreux est directement contrôlé par les minéraux argileux.

Dans les niveaux plus carbonatés (marneux), les orientations des axes K₁ et K₃ avant et après injection sont identiques (Fig. V.17b). Pour les niveaux plus silteux, la partie inférieure de la lithologie 3 (Fig. V.17d) reflète les mêmes orientations que l'organisation des niveaux argileux car leur concentration en silts est faible. Dans la partie supérieure de la lithologie 3 (Fig. V.17c), les injections à faible pression (40 bars) ont des axes K₃ non verticaux, soulignant des circulations des fluides proches de la verticale. Ce caractère peut souligner la présence de microfractures ou des chemins de percolation sub-verticaux fossiles hérités de la phase de compaction. Lorsque la pression augmente, le réseau de porosité précédent est saturé et permet ensuite d'accéder au réseau des silts puisque l'axe K₃ est vertical (i.e. circulation dans le plan de litage) et l'axe K₁ est parallèle à la direction de K₁ avant injection. A plus forte pression, ≥ 140 bars, l'axe K₃ reste vertical, donc la circulation se maintient dans le plan de litage mais l'axe K₁ montre une rotation qui vient s'orienter dans la même direction que celles des orientations des argiles (NNE-SSO). Ces mesures indiquent l'existence d'un triple réseau de porosité dans les échantillons silteux. Chaque partie du réseau est contrôlée par chacune des fractions minéralogiques qui composent ce matériau.

Ainsi, la méthode d'injection de ferrofluide permet de mieux appréhender l'organisation de la porosité en relation avec la fabrique minérale et les structures héritées dans l'argilite. Cette technique permet de parfaitement identifier l'orientation et la forme des objets qui composent la porosité. Associée à la technique d'injection orientée de mercure, elle permet de définir la structure du réseau poreux.

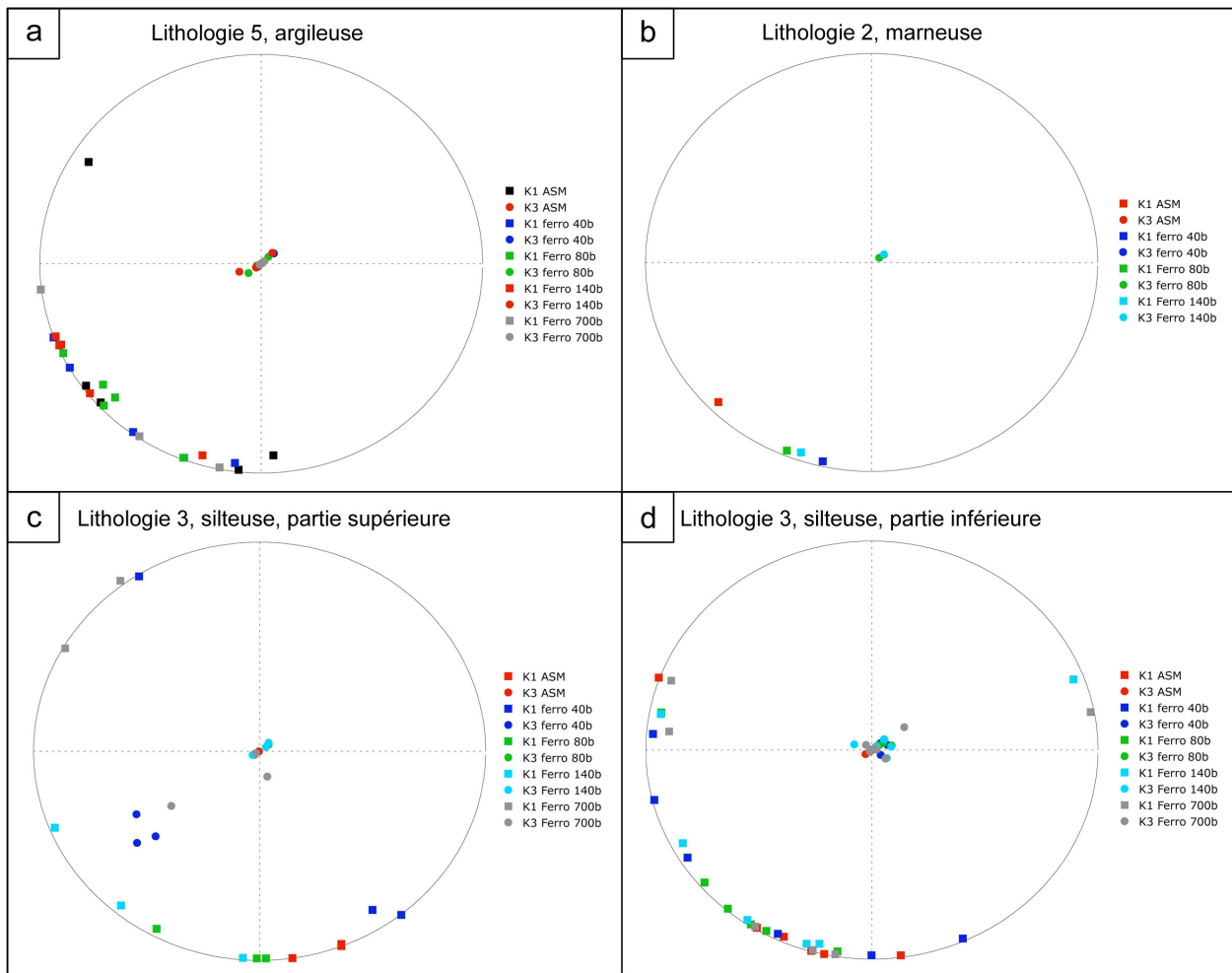
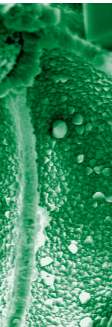


Figure V.17: Diagrammes d'orientation des axes K_1 et K_3 de d'ASM avant et après injection de ferrofluide pour 4 types de lithologies rencontrées dans le forage EST211. Les ronds correspondent aux axes K_3 et les carrés correspondent aux axes K_1 de l'ASM. Les couleurs correspondent à des paliers de pression d'injection spécifique. Toutes les mesures sont réorientées par rapport au nord de la même manière que les réorientations de l'ASM du chapitre 4.

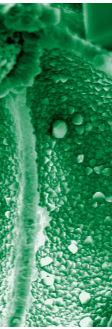


5 – Apports de la pétrophysique dans les argilites

Forage EST211		Pression d'injection	K (μSI)		ASM avant injection (°)						ASM après injection (°)						Avant injection			Après injection			Comparaisons Après injection/ Avant injection			
# Lithologie		700 bars	Km avant injection	Km après injection	K1 Dec	K1 Inc	K2 Dec	K2 Inc	K3 Dec	K3 Inc	K1 Dec	K1 Inc	K2 Dec	K2 Inc	K3 Dec	K3 Inc	Pp %	Lp %	Fp %	Pp %	Lp %	Fp %	Km	Pp	Lp	Fp
6	15286-B1	97	1603	228	2	318	0	232	88	214	1	304	0	234	89	31,07	12,78	29,76	276,03	6,53	267,75	16,61	8,88	0,51	9,00	
	15319-A3	97	199	193	0	283	0	47	90	191	1	281	1	52	89	22,97	1,90	21,03	129,74	10,30	118,22	2,05	5,65	5,41	5,62	
	15348-A1	107	1036	234	2	144	0	229	88	263	0	173	0	242	90	29,74	6,75	29,04	792,26	12,04	770,93	9,68	26,64	1,78	26,54	
5	15371-A3	119	835	223	2	313	0	48	88	187	7	278	5	227	81	31,55	8,74	30,64	635,03	113,91	467,83	7,01	20,13	13,03	15,27	
	15422-B1	160	15559	175	0	265	0	230	89	99	12	7	9	242	75	37,34	1,94	35,33	657,11	320,22	255,18	97,28	17,60	164,99	7,22	
	15474-B3	147	6998	207	0	297	0	234	90	136	13	46	1	302	76	45,50	8,41	44,67	815,21	427,74	271,38	47,61	17,92	50,84	6,08	
	15496-A3	152	2088	186	1	276	1	234	89	256	9	166	1	59	81	34,12	28,08	31,10	1803,56	15,70	1583,32	13,76	47,00	0,54	50,27	
	07822-B3	189	297	202	1	292	1	57	89	171	4	263	3	54	75	7,28	0,38	6,89	381,57	149,83	201,55	1,57	52,45	391,68	29,25	
	15509-A1	145	1067	213	4	303	1	229	86	195	1	285	1	251	88	20,39	4,94	19,89	825,03	90,33	673,83	7,36	40,46	18,29	33,88	
	15523-A3	165	3581	275	1	185	1	55	89	227	11	136	3	28	79	22,52	10,85	21,41	1573,45	122,83	1291,93	21,71	69,88	11,32	60,35	
15563-A1	162	5531	191	0	281	0	55	89	345	-26	237	-32	286	47	32,12	11,24	30,96	1793,34	283,87	1175,71	34,24	55,84	25,25	37,98		
15584-A3	129	449	170	0	260	1	53	89	321	0	231	5	52	85	14,25	7,44	13,50	681,95	25,22	640,57	3,49	47,85	3,39	47,45		
4	15610-A3	93	604	167	5	257	8	227	81	270	0	180	4	55	90	1,14	0,57	0,56	886,58	84,60	739,43	6,53	780,47	147,18	1318,41	
3+	15641-B2	135	347	159	1	249	2	233	88	300	1	210	2	236	89	46,89	22,86	44,50	610,94	24,97	571,69	2,58	13,03	1,09	12,85	
	15665-B1	96	104	172	0	262	0	233	90	182	-10	91	-3	164	80	31,32	16,12	29,66	30,68	24,52	6,01	1,07	0,98	1,52	0,20	
	15691-A3	103	112	161	0	251	1	53	89	323	-3	231	-39	236	51	42,72	33,40	39,25	138,53	25,08	110,68	1,09	3,24	0,75	2,82	
3-	15720-A3	109	1908	211	1	301	0	235	89	291	6	21	1	125	84	41,51	5,56	40,93	2222,23	202,18	1680,32	17,47	53,54	36,34	41,05	
	15748-B2	112	694	290	0	200	1	230	89	276	11	184	10	53	75	48,98	5,74	48,38	937,62	16,07	906,98	6,22	19,14	2,80	18,75	
	15783-B1	115	144	214	1	304	0	231	89	189	1	279	1	233	89	52,83	3,74	48,90	125,75	14,76	109,38	1,25	2,38	3,95	2,24	
	15811-A1	109	3516	196	0	286	0	61	90	195	1	285	2	84	88	43,23	4,33	38,73	3047,35	135,70	2563,76	32,39	70,49	31,34	66,19	
	15853-B3	108	330	233	3	323	0	234	87	211	1	301	2	52	89	32,50	0,52	31,96	540,89	35,04	488,73	3,07	16,64	67,67	15,29	
2	15870-A1	101	25185	204	3	294	2	54	87	79	2	169	2	312	87	24,21	2,03	22,14	723,88	41,33	655,45	249,71	29,90	20,41	29,60	
1	15902-B1	108	42454	225	5	315	1	56	85	194	2	284	2	61	88	17,83	15,38	16,27	933,66	90,70	772,86	391,38	52,35	5,90	47,50	
	15938-A2	15	6697	190	5	280	6	243	82	149	5	239	6	180	81	4,18	22,70	1,90	59,43	3,06	56,20	452,65	14,23	0,13	29,52	

Forage EST211		Pression d'injection	K (μSI)		ASM avant injection (°)						ASM après injection (°)						Avant injection			Après injection			Comparaisons Après injection/ Avant injection			
# Lithologie		140 bars direct	Km avant injection	Km après injection	K1 Dec	K1 Inc	K2 Dec	K2 Inc	K3 Dec	K3 Inc	K1 Dec	K1 Inc	K2 Dec	K2 Inc	K3 Dec	K3 Inc	Pp %	Lp %	Fp %	Pp %	Lp %	Fp %	Km	Pp	Lp	Fp
6	15319-A3	97	212	193	0	283	0	47	90	155	0	245	2	49	88	22,97	1,90	21,03	66,67	4,93	61,44	2,18	2,90	2,59	2,92	
	15422-B1	160	3496	175	0	265	0	230	89	228	15	136	5	209	74	37,34	1,94	35,33	338,27	58,78	263,98	21,86	9,06	30,29	7,47	
5	15523-A2	170	3260	306	0	216	1	231	89	230	11	139	4	28	78	22,28	0,38	21,89	1443,69	142,03	1139,78	19,13	64,81	370,61	52,08	
	15783-B1	115	159	214	1	304	0	231	89	164	0	254	0	47	89	52,83	3,74	48,90	56,20	2,00	54,10	1,38	1,06	0,53	1,11	
	15853-B3	108	231	233	3	323	0	234	87	275	0	5	2	281	90	32,50	0,52	31,96	179,53	86,04	86,08	2,15	5,52	166,18	2,69	
1	15938-A3	8	2090	194	0	284	5	103	85	3	8	272	19	177	82	2,62	0,77	1,85	32,99	20,48	12,26	252,53	12,57	26,46	6,63	

Tableau V.4: Données magnétiques des mesures avant et après injection au ferrofluide pour les différents paliers de pression dans le forage EST211. Les lithologies et leur numéro ont été remplacés pour les échantillons imprégnés. Km est la susceptibilité magnétique moyenne (en μSI); K1, K2 et K3 sont les axes d'ASM; Pp est le degré d'anisotropie corrigé du diamagnétisme; Lp est la linéation corrigée du diamagnétisme et Fp est la foliation corrigée également du diamagnétisme.



5.5.5. Modélisation numérique avec le logiciel Pore-Cor

5.5.5.1. Principe du logiciel

Le logiciel “Pore-Cor” (www.pore-cor.com) permet de modéliser en 3D le réseau poreux de tout type de matériaux à partir des mesures d’injection de mercure. Encore en plein développement dans l’équipe de son créateur Peter Matthews, ce logiciel permet également de calculer différentes propriétés de transfert de fluides ou de matière tels que la perméabilité pour différents types de gaz, les transferts de colloïdes, le transport de différents fluides mouillants ou non mouillants dans le réseau poreux...(Johnson et al., 2003; Matthews et al., 1993, 1995 et 2006). Ce calcul des propriétés de transfert nécessite la définition de la structure du réseau à l’échelle microscopique, obtenue par injection de mercure, et de la structure macroscopique du réseau généralement obtenue par observation au MEB ou en microscopie optique.

Le but que nous nous fixons dans cette partie est de définir une géométrie du réseau poreux des argilites de Bure à partir de nos données d’injection de mercure et des valeurs de perméabilités obtenues par différents auteurs (Laego, 2005 entre autres) de l’échelle du laboratoire ou à celle du forage. Les travaux de Delay et al. (à paraître) montrent que les valeurs de perméabilité sont du même ordre quelle que soit l’échelle d’investigation.

Ce modèle fonctionne en deux étapes, la première consiste à reconstruire un réseau poreux virtuel et la seconde à calculer des propriétés de transferts. Le réseau poreux virtuel est composé d’une succession d’évasements (les pores) et de constriction (les seuils d’accès aux pores). La structure du réseau est un cube de dix nœuds d’arête, à chaque nœud du réseau est placé un pore relié à ses voisins par des constriction. Au cours de la première étape, il s’agit donc de reproduire la courbe expérimentale d’injection de mercure en définissant notamment la géométrie des constriction entre les pores. Pour cela, ce modèle intègre les différentes lois de l’écoulement des fluides non mouillants (angle de contact, tension de surface...) ainsi que des informations sur la porosité obtenues par observations directes ou certaines hypothèses faites sur la géométrie du réseau (la forme des vides, le nombre de connexion autour d’un pore, la tortuosité...). Ces données sont paramétrables et seront ajustées au cours de la modélisation pour s’approcher des résultats expérimentaux par calcul stochastique en intégrant le principe de parcimonie. Le modèle est, comme tout modèle, confronté aux problèmes d’intégration des différentes échelles d’observation ou de mesure qui peuvent se traduire soit par des géométries différentes soit par des mécanismes de transfert différents selon qu’on se place à l’échelle du pore, à celle de l’échantillon centimétrique ou métrique. Pour essayer d’intégrer ce changement d’échelle, le modèle nous propose le choix entre 7 structures différentes (Fig. V18). Cette géométrie a des conséquences sur la forme même de la courbe d’injection, elle devient donc un paramètre à part entière. Elle peut être choisie à partir des observations directes ou encore testées à partir d’une série d’itération. Une fois l’ensemble de ces paramètres testés et sélectionnés, le modèle choisi fait des inversions et calcule en routine toutes les possibilités de répartition de l’espace poreux pour au final proposer celui qui s’approche le mieux des résultats expérimentaux.

La structure de cette modélisation correspond à une saturation du réseau poreux du haut vers le bas du modèle. Ce fonctionnement orienté est parfaitement adapté à la modélisation de nos essais d’injection orientés. Au cours de la présentation des résultats, il suffira de replacer les axes dans leurs bonnes orientations.

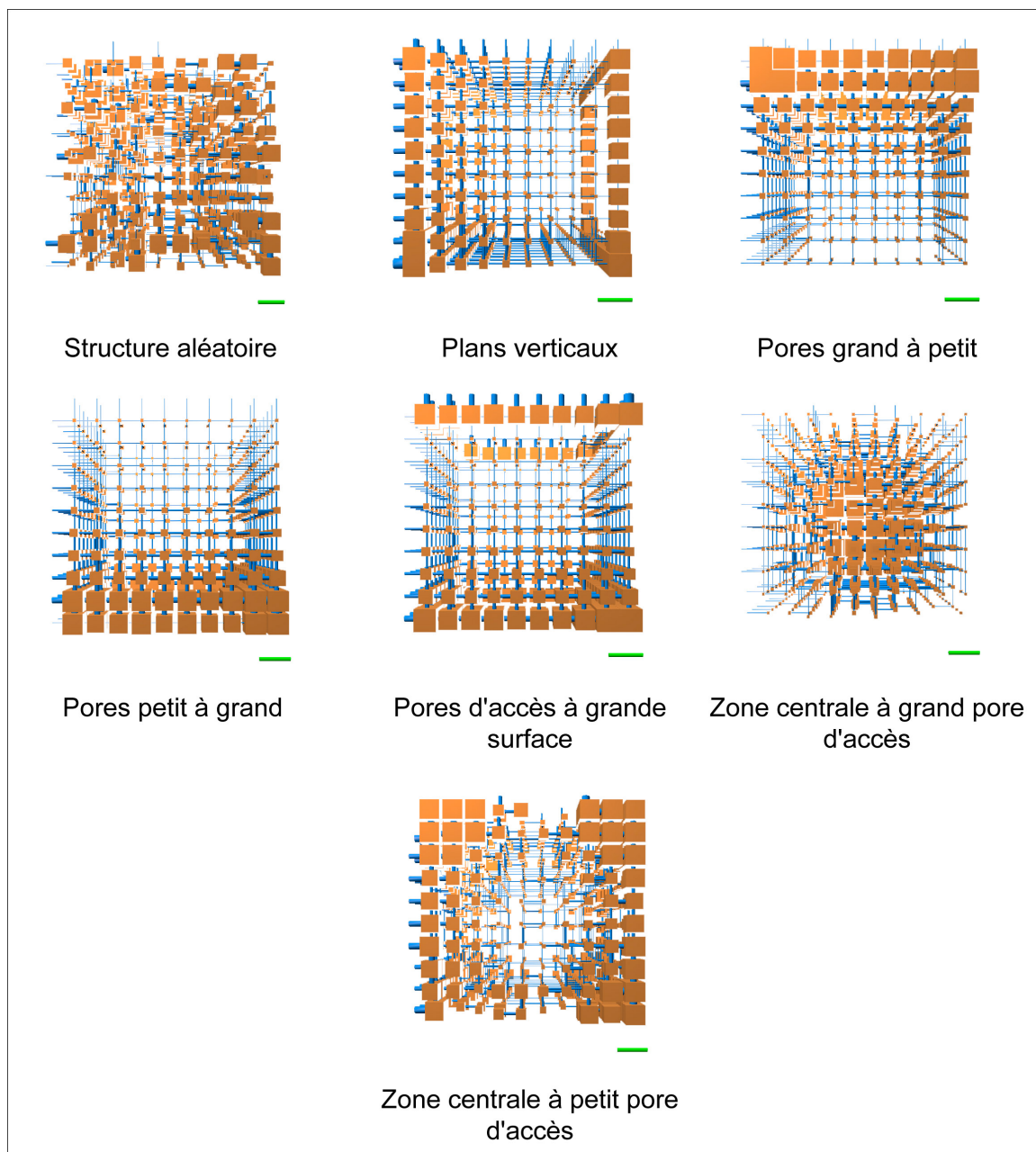
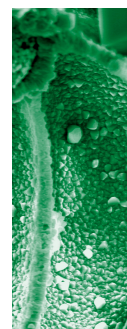


Figure V.18: Modèles de base de départ de la modélisation du logiciel Pore-cor relatif à des structures de roches spécifiques. La circulation des fluides arrive toujours par la partie supérieure du modèle et se déplace vers le bas selon l'axe vertical.

Ce n'est qu'après avoir obtenu cette géométrie que l'on peut calculer des perméabilités, des imbibitions par des fluides tels que de l'eau, de l'huile, en prenant en compte un certains nombre de facteurs géométriques comme l'effet de taille des pores sur le transport (Fig. V. 19).



Le logiciel utilise les lois de Darcy, les relations entre porosité et perméabilité de Katz et Thompson (1986), l'équation d'écoulement de Poiseuille en choisissant un modèle d'écoulement, soit entre 2 plaques infinies, soit dans des chemins tubulaires. De nombreuses autres lois sont utilisées pour affiner les comportements des écoulements (loi de Lucas-Washburn), les paramètres des fluides utilisés avec les équations de Bosanquet et Bosanquet étendues. Il intègre des paramètres d'anisotropies structurales du réseau poreux pour un meilleur calcul de perméabilité. Au final, le modèle utilise alors une équation qui somme tous les calculs de ces lois, pour proposer la perméabilité la plus réaliste.

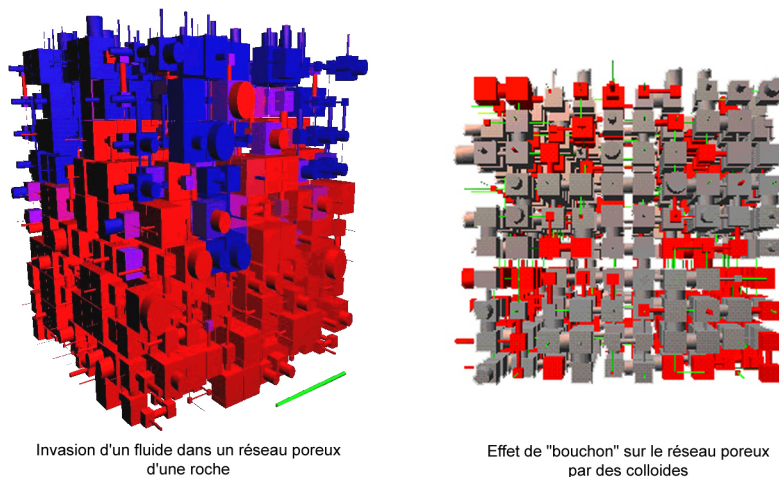


Figure V.19: Exemple d'effet d'imbibition dans un réseau poreux d'une roche modélisée par le logiciel Pore-Cor. Le modèle de gauche est envahi par un fluide (huile en bleu) dans un réseau poreux (en rouge). Le modèle de droite modélise la circulation de colloïdes (en gris) qui remplissent les pores et bloquent la circulation des fluides dans le réseau poreux général (en rouge).

5.5.5.2. Application du logiciel sur les argilites

Pour cause de manque de temps, nous avons seulement testé le calcul de perméabilité et la modélisation 3D du réseau poreux sur les lithologies marneuses (lithologie 4) du forage EST211. Après différents essais, il s'est avéré que le modèle le plus proche des résultats expérimentaux, c'est-à-dire permettant une bonne reproduction des courbes d'injection de mercure, était une structure de base de type "plans verticaux" pour les mesures de porosité selon les axes K1 et K2 (i.e. plan de litage) et de type "zone centrale à petit pore d'accès" selon l'axe K3.

Après de nombreux réglages et tests pour améliorer la simulation, on obtient une modélisation du réseau de porosité représentée sur la figure V.20 pour l'échantillon 15610-A2 pris selon l'axe K1 (i.e. sur la figure: K1 est vertical, axe +z du modèle). On retrouve le même type de modèle pour l'axe K2. Le modèle pour l'échantillon pris selon l'axe K3 ne montre pas de caractère particulier dans le modèle, ce qui souligne que les pores sont tous \pm identiques dans la direction de K3. Le logiciel de modélisation ne permet qu'une injection selon l'axe vertical, il convient donc de repositionner chaque axe dans la bonne orientation. Ainsi, ce modèle nous confirme donc l'existence d'une structuration du réseau poreux parallèle à la stratification portée par les axes K1 et K2, l'axe K3 porte une structure moins bien orientée.

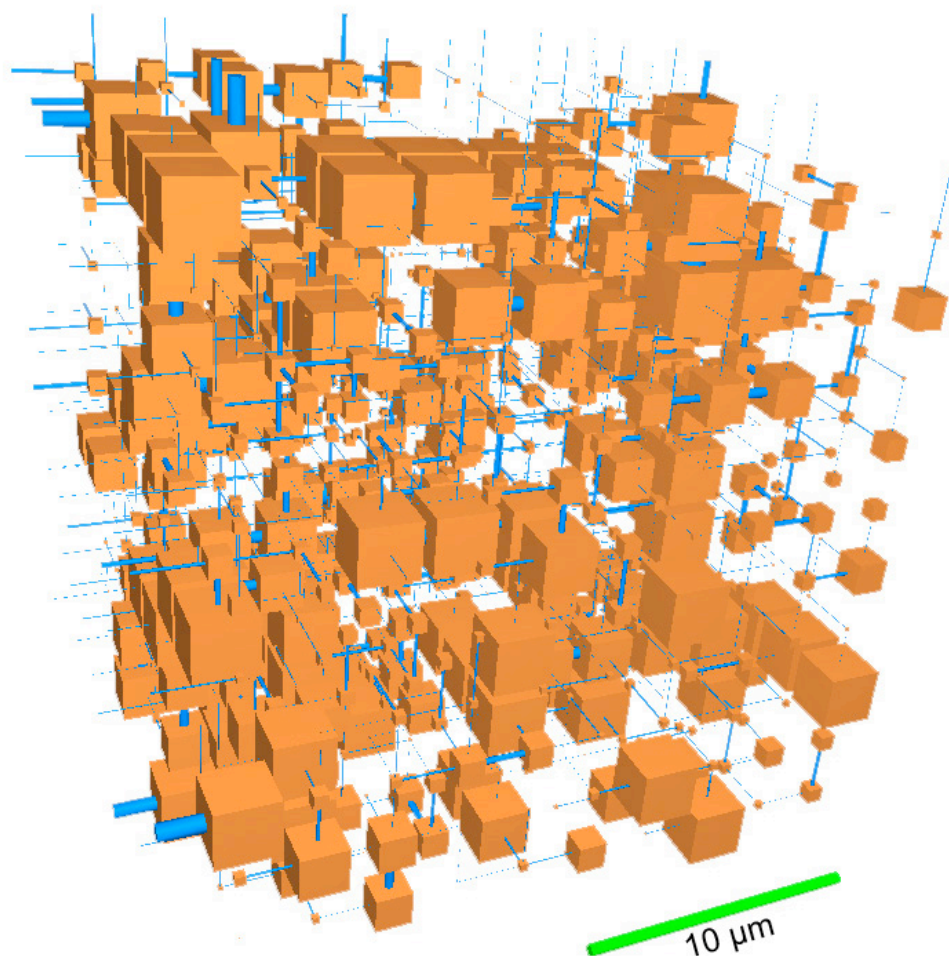
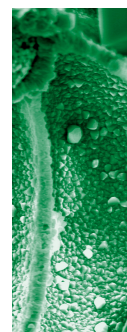


Figure V.20: Modélisation 3D avec le logiciel Pore-Cor d'un échantillon du forage EST211 prélevé dans un niveau marneux (lithologie 4).

Après calcul de perméabilité, il ressort que selon l'axe K2, la perméabilité est nulle avec tout liquide et de l'ordre de $1,66 \cdot 10^{-8}$ mD pour les perméabilités à l'azote et au méthane. Les perméabilités calculées selon l'axe K1 sont « mesurables » avec les liquides et sont d'environ $4 \cdot 10^{-8}$ mD et autour de $5 \cdot 10^{-6}$ mD pour les perméabilités au méthane et à l'azote. Elles sont encore plus faibles selon l'axe K3 avec des valeurs de $2,2 \cdot 10^{-9}$ mD pour les liquides et de $1,7 \cdot 10^{-7}$ mD pour le méthane et l'azote. Le modèle montre donc que la perméabilité des argilites des niveaux marneux ne permet pas la circulation des liquides de toutes natures, en particulier l'eau. Ainsi, on constate que si un fluide doit circuler (tel que l'eau) dans l'argilite des niveaux marneux, il circulera dans le plan de litage et préférentiellement selon l'axe d'organisation des argiles (i.e. SSE-SSO; parallèlement à K1).

Des tests d'invasion par de l'huile ont été modélisés (Fig. V.21) sur cet échantillon argilo-marneux et montre qu'il est impossible de pénétrer le réseau poreux sans pressions appliquées très fortes du fait du caractère non mouillant du fluide et de la petite taille des vides.



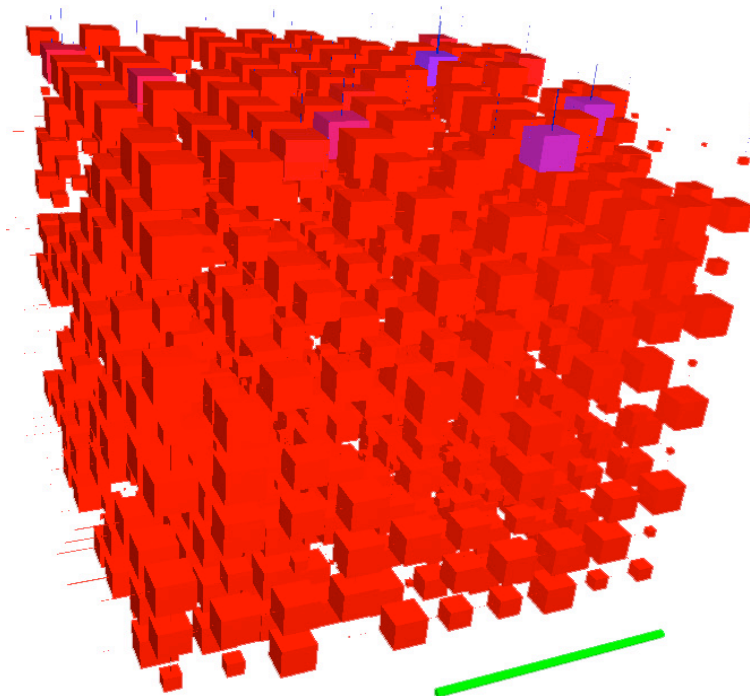


Figure V.21: Modélisation 3D du réseau poreux avec le logiciel Pore-cor envahit par une huile (cellules mauves).

Des tests d'invasion par un polymère virtuel à différente taille de particule a aussi été testé (Fig. V.22).

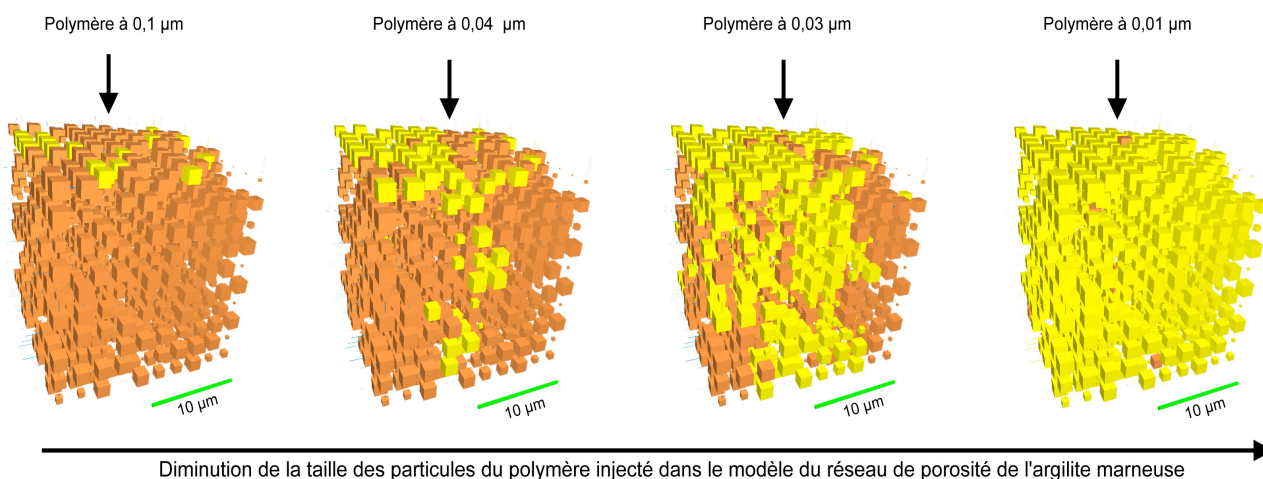
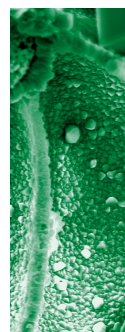


Figure V.22: Modélisation 3D du réseau poreux d'une argilite marneuse du forage EST211 injecter par un polymère (cellules jaunes) de différente taille de particules avec le logiciel Pore-Cor.

On note que l'invasion par le polymère ne peut commencer qu'à partir de taille de particule de 0,04 µm. Ce polymère vient d'abord envahir le plan de litage avant de commencer sa diffusion verticalement (dans le repère de l'échantillon réel). La saturation du réseau poreux est atteinte pour des tailles de particules de 0,01 µm. Nous rappelons que les pressions d'injection appliquées par le modèle ne peuvent pas exister dans le site de stockage potentiel de l'Andra à Bure.

Les mesures sur échantillons du Callovo-Oxfordien en laboratoire montraient des perméabilités à l'eau allant de 10^{-22} à 10^{-24} m². Nos simulations montrent des valeurs allant de $1,6 \cdot 10^{-23}$ à $2 \cdot 10^{-24}$ m² tout à fait compatibles avec ces résultats expérimentaux, même s'ils sont à prendre avec beaucoup de précaution car ne concernant qu'un petit nombre d'échantillon. La modélisation ne permet pas de calculer directement des conductivités hydrauliques (K). D'après les résultats de forage et à l'échelle de l'échantillon, les valeurs sont comprises entre $5 \cdot 10^{-14}$ et $5 \cdot 10^{-13}$ m/s (Laego, 2005; Delay et al., 2006). Si nous utilisons une valeur du paramètre de viscosité dynamique $\eta = 1,7$ qui prend en compte les interactions eau-roche pour retrouver les mêmes résultats que les mesures expérimentales grâce à la relation ($K = k/\eta$), les perméabilités que nous modélisons nous permettent de calculer des conductivités hydrauliques qui sont alors autour de $2 \cdot 10^{-14}$ m/s et tout à fait proches des mesures expérimentales. De telles vitesses d'écoulement correspondent à un déplacement d'environ 1m tout les 1,6 millions d'années.





Chapitre 6

Discussion
conclusion



Chapitre 6 – discussion-conclusion sur la minéralogie et l'organisation des argilites du Callovo-Oxfordien

L'objectif que nous nous étions fixés dans ce travail était de caractériser la minéralogie magnétique, son organisation et son évolution au sein de l'ensemble de la formation des argilites du Callovo-Oxfordien, pour tenter de traduire ces messages en termes de dynamique sédimentaire et peut-être climatique. Nous avons par la suite, tenter de corrélérer le signal sédimentaire et la structure des argilites avec des nouvelles méthodes d'injection au mercure et au ferrofluide. Enfin, nous avons initié des modélisations en trois dimensions du réseau poreux des argilites pour calculer des perméabilités qui sont si difficiles à mesurer actuellement pour leur faible valeur (Delay et al., à paraître). A l'issu de ces travaux, plusieurs conclusions semblent émerger, et qui sont en bonnes relations avec les hypothèses émises par d'autres auteurs, concernant l'environnement et la dynamique sédimentaire ainsi que la structure des argilites du Callovo-Oxfordien.

6.1. La minéralogie magnétique et son message

Les calibrations des mesures magnétiques sur les premiers tronçons issus des forages verticaux HTM102 et MSE101 ont permis de constater qu'au premier ordre, la susceptibilité magnétique permettait d'estimer la concentration relative en argiles alors que la rémanence magnétique était plus sensible à la concentration en grains ferrimagnétiques, corrélés à leur tour avec celle des silts. Il est difficile d'imaginer que les apports terrigènes et en particuliers les niveaux silteux, ne portent pas en leur sein des grains détritiques ferrimagnétiques, en particulier lors des phases d'érosion des massifs environnants, tels que des magnétites. Les caractérisations minéralogiques sont en faveur de cette hypothèse.

La susceptibilité (K) et la rémanence naturelle (ARN) et artificielle (ARA, ARI) sont donc des proxy des silts et des argiles (Fig. VI.1) où de fortes valeurs en ARN, ARA et ARI soulignent préférentiellement un apport relatif de silts non négligeable et où les valeurs de K ($> 120 \mu\text{SI}$) sont plus sensibles à un apport d'argile important. La lithologie 3, partie supérieure, montre un plus fort enrichissement en grains ferrimagnétiques (i.e. silts) que sa partie inférieure puisque les rémanences sont plus fortes, et un léger appauvrissement en argile, susceptibilité plus faible, favorable à un apport progressif et de plus en plus fort de silt. Les marnes sont caractérisées par de très faibles valeurs d'ARN, ARA et ARI et une susceptibilité autour de $100\text{-}120 \mu\text{SI}$ et les niveaux plus carbonatés possèdent des faibles valeurs de tous les paramètres magnétiques.

Lorsqu'on compare ces paramètres de concentration sur l'ensemble des forages avec les données lithologiques, on retrouve une image de l'évolution séquentielle et, de ce fait, le découpage lithologique du Callovo-Oxfordien avec des périodes riches en argiles et d'autres plus riches en silt (Fig. VI.1). On peut remarquer que la lithologie de transition 2 (fin du Callovien inférieur) du forage EST342, pourtant pauvre en grain ferrimagnétique et avec une susceptibilité modérée dans son équivalent du forage EST211, possède de forte valeur de susceptibilité.



Ce niveau, pourtant pauvre en argile, doit donc être affecté d'une minéralogie à grains ferrimagnétiques particulière à forte rémanence créée par un mécanisme physico-chimique tel que des circulations de fluide ou une oxydation importante des minéraux magnétiques. Aucun indice d'émergence du Callovien supérieur n'a pourtant été repéré dans toute la zone du secteur à cette époque. La circulation des fluides doit donc être une possibilité à envisager, d'autant plus qu'on se trouve dans une zone de découplage entre calcaire et argilite, favorable à des circulations de fluide capables d'oxyder les minéraux magnétiques en hématite et/ou goéthite. La non saturation de l'ARI (exemple: Fig. IV.32) et la présence d'une population à forte coercivité (Fig. IV.33) semblent d'ailleurs confirmer l'existence de ces minéraux dans ce niveau, tout comme le passage entre l'Oxfordien inférieur et moyen.

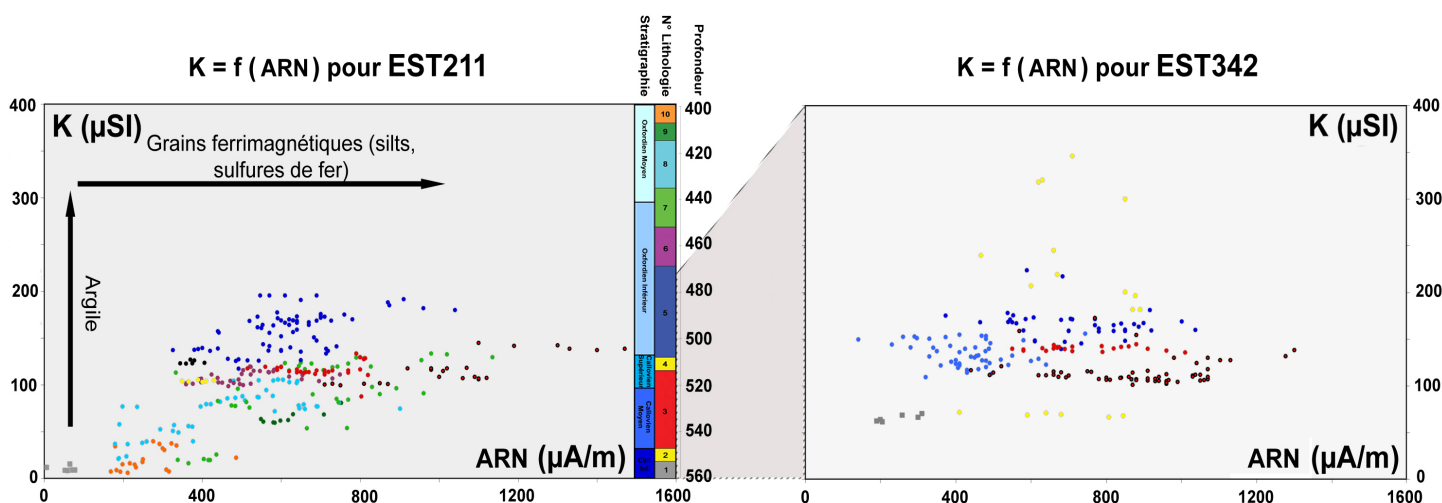


Figure VI.1: Evolution de K en fonction de l'ARN des forages EST211 et EST342. Les couleurs des points correspondent aux couleurs de la lithologie du Log géologique proposé. Les ronds rouges entourés de noir sont la partie supérieure de la lithologie 3.

La fraction ferrimagnétique, pouvant influencer largement le signal de la susceptibilité, a alors été étudiée spécifiquement pour tenter d'extraire les tailles de grains, leurs concentrations relatives et leurs natures.

En premier lieu, nous avons comparé la susceptibilité à l'ARAs qui estime la quantité de minéraux sensible à des aimantations de 100 mT tels que la magnétite (Fig. IV.29 et Fig.2 article au GJI). Ce paramètre confirme notre hypothèse où les minéraux ferrimagnétiques sont présents dans les niveaux plus silteux (lithologies 3 et 7 pour le forage EST211 et uniquement la lithologie 3 pour le forage EST342) car l'intensité de l'ARAs est plus importante dans ces niveaux.

Ensuite, nous avons approché le signal ferrimagnétique en séparant son signal rémanent en plusieurs fenêtres de coercivité. Les spectres de coercivité naturels et artificiels par désaimantation AF et les analyses de l'ARI avec le logiciel IRMUNMIX ont permis de simuler trois populations, l'une de faible coercivité centrée autour de 10 mT, une autre autour de 45 mT de moyenne coercivité et une dernière autour de 150-200 mT de haute coercivité. La contribution de cette dernière jouant pour 30 % contre 70% avec la somme des deux populations de plus faible coercivité. Le signal de l'ARA convolué donc les populations de faible et moyenne coercivités observées et montre dans les deux forages une plus grande concentration en grains sensibles à ces champs, dans les lithologies silteuses (Fig. 7 article au GJI et Fig. IV.34). Les spectres de coercivité artificiels évoluent de la même façon dans la formation et ont une intensité du signal identique, ce qui peut caractériser que les familles de moyenne et de haute coercivité sont de même nature, à la taille de grain près.

Les vecteurs rémanents des populations obtenues par les spectres de coercivité et ARI, montrent que la famille de moyenne coercivité possède des vecteurs stables et enregistrent le Nord actuel (exemple, Fig. 14, article au GJI). Les minéraux de cette famille sont donc certainement authigènes et composés de sulfures de fer ferrimagnétiques. Son inclinaison est proche du Nord actuel, d'autant plus que le Nord du Jurassique dans le site est, d'après les bases de données paléomagnétiques, de -45° d'inclinaison et vient renforcer l'idée que cette population de grain porte l'actuel nord magnétique. Ces grains sont donc utilisés comme boussole pour réorienter les échantillons des forages verticaux dont on ne connaît plus la déclinaison mais uniquement la polarité. La famille de plus haute coercivité présente des vecteurs rémanents sans aucune cohérence d'un échantillon à un autre contenus dans un même disque du tronçon, soulignant plutôt un caractère détritique et composé d'oxydes de fer ferrimagnétiques.

Les spectres de coercivité artificiels montrent que la famille de moyenne coercivité s'aimante relativement moins bien que la famille de plus haute coercivité (Fig. 6, article au GJI). Compte tenu de l'aspect détritique et diagénétique des deux familles, ces aspects viennent appuyer notre hypothèse où la famille de moyenne coercivité est composée de sulfures de fer ferrimagnétiques alors que la famille de plus haute coercivité est constituée d'oxydes de fer, plus facilement aimantables. Les données magnétiques avec la gyrorémanence, les températures de déblocage à basse et haute températures semblent confirmer l'existence des sulfures de fer, notamment la greigite dans les niveaux les plus argileux, favorable à leur formation (Figs. IV.16 et 18 et figs. 11 et 13, article au GJI). Les données géochimiques de sulfate et de fer total (Fig. 3, article au CRAS) viennent renforcer nos interprétations avec de fortes concentrations en fer et soufre pour les niveaux riches en sulfures de fer et pauvre en soufre pour les niveaux riches en oxydes de fer.

La faiblesse de cette interprétation se porte sur la taille des grains ferrimagnétiques qui peut fournir le même signal que l'effet de la concentration et de la nature des grains magnétiques. Les grains à multiples domaines (MD) sont plus sensibles à une aimantation que ceux des simples domaines (SD). Nous avons donc mesuré la taille des grains aux travers des paramètres magnétiques que sont les données d'hystérésis, la susceptibilité magnétique multifréquence, rapport-S/K, χ_{ARA}/K ; ARAs/ARIs, $ARA_{(-50mT)}-ARA_{(-70mT)}/ARAs$ (Figs. 3, 4 et 5, article au GJI et Figs. IV.30 et 31). Tous ces paramètres convergent vers des plus gros grains dans les lithologies silteuses et des plus petits grains dans les lithologies argileuses.



Plus spécifiquement, nous avons comparé l'évolution des paramètres magnétiques avec la stratigraphie séquentielle. Nous rappelons que le Callovo-Oxfordien est composé de 3 cycles de troisième ordre avec un premier cycle au Callovien moyen à supérieur, puis un deuxième cycle à l'Oxfordien inférieur et enfin un troisième cycle à la base de l'Oxfordien moyen se poursuivant en calcaires au dessus du Callovo-Oxfordien. Malheureusement, le diagramme de stratigraphie séquentielle du forage EST211 correspond à celui du forage HTM102 car il n'a pas encore été dessiné. Il existe donc dans ce diagramme un léger décalage, en particulier pour le troisième cycle de troisième ordre du Callovo-Oxfordien qui est corrigé avec les traits en pointillés grâce au forage EST210 qui est le plus proche en distance du forage EST211.

Ainsi, on constate que le passage Oxfordien inférieur-moyen (début du troisième cycle de troisième ordre) est marqué par une augmentation forte des paramètres de concentration des grains ferrimagnétiques (Fig. VI.2) associé à une augmentation des paramètres de taille de grains (Fig. VI.3) pendant la phase de transgression marine. Ce passage est donc certainement lié à un apport brutal de silt et de grains ferrimagnétiques dont le maximum d'intensité est enregistré au maximum d'inondation (SI₃) de la troisième séquence de troisième ordre. La difficulté est de comprendre si ces apports de silt sont liés au mouvement eustatique de troisième ordre qui permet de remanier plus ou moins les dépôts de minéraux sur les massifs environnants ou plutôt lié à des énergies de courant marin plus fort pendant ces phases de montée et baisse des eaux.

On retrouve ce même type d'aspect lors du maximum d'inondation de la deuxième séquence de troisième ordre (SI₂), correspondant aussi au maximum de dépôt des argiles, où K, ARN, HIRM/K atteignent de fortes valeurs. Les paramètres ARA ne marquent aucun changements lors de ce maximum d'inondation. Cette séquence ainsi que la première ne montrent donc pas de relations directes avec les paramètres de concentration et de taille de grains magnétiques.

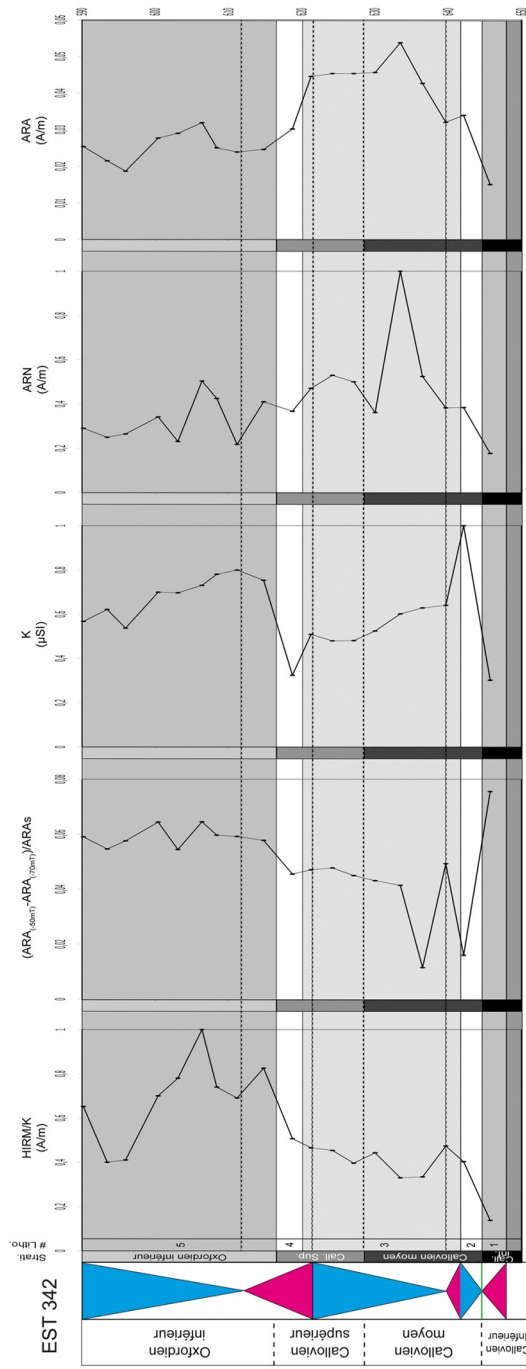
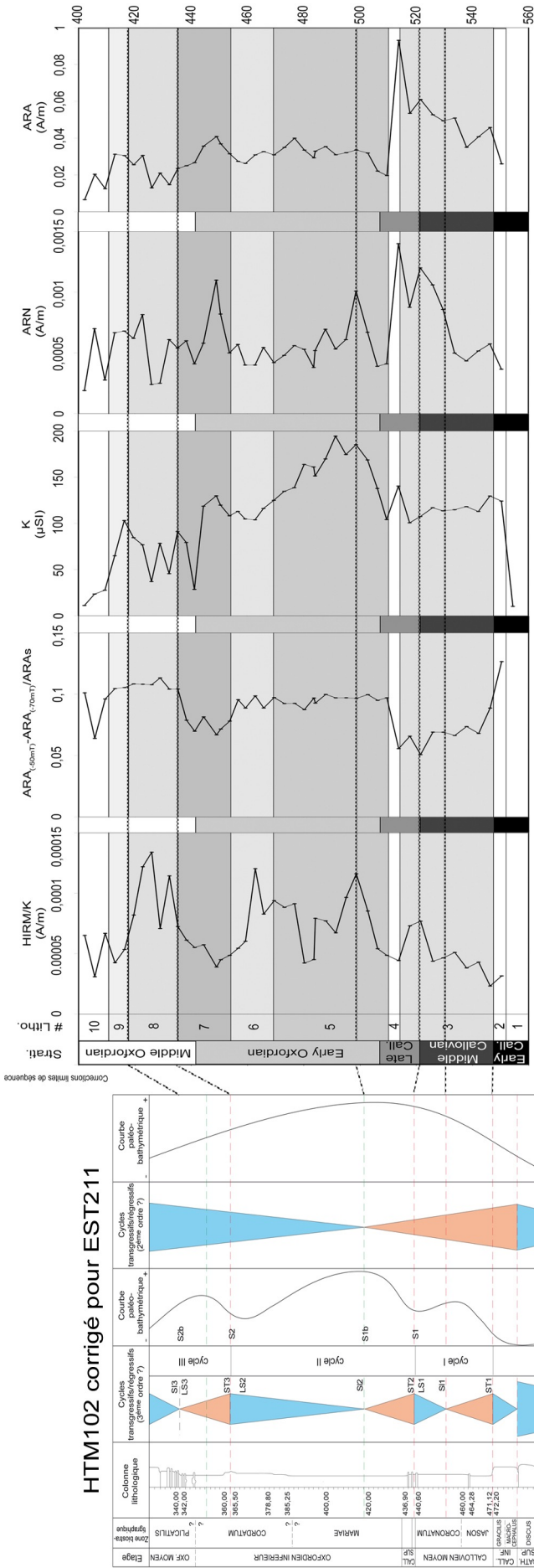


Figure VI.2: Corrélation des paramètres magnétiques de concentration et nature des grains magnétiques pour les forages EST211 et EST342 avec les évolutions séquentielles du Callovo-Oxfordien.



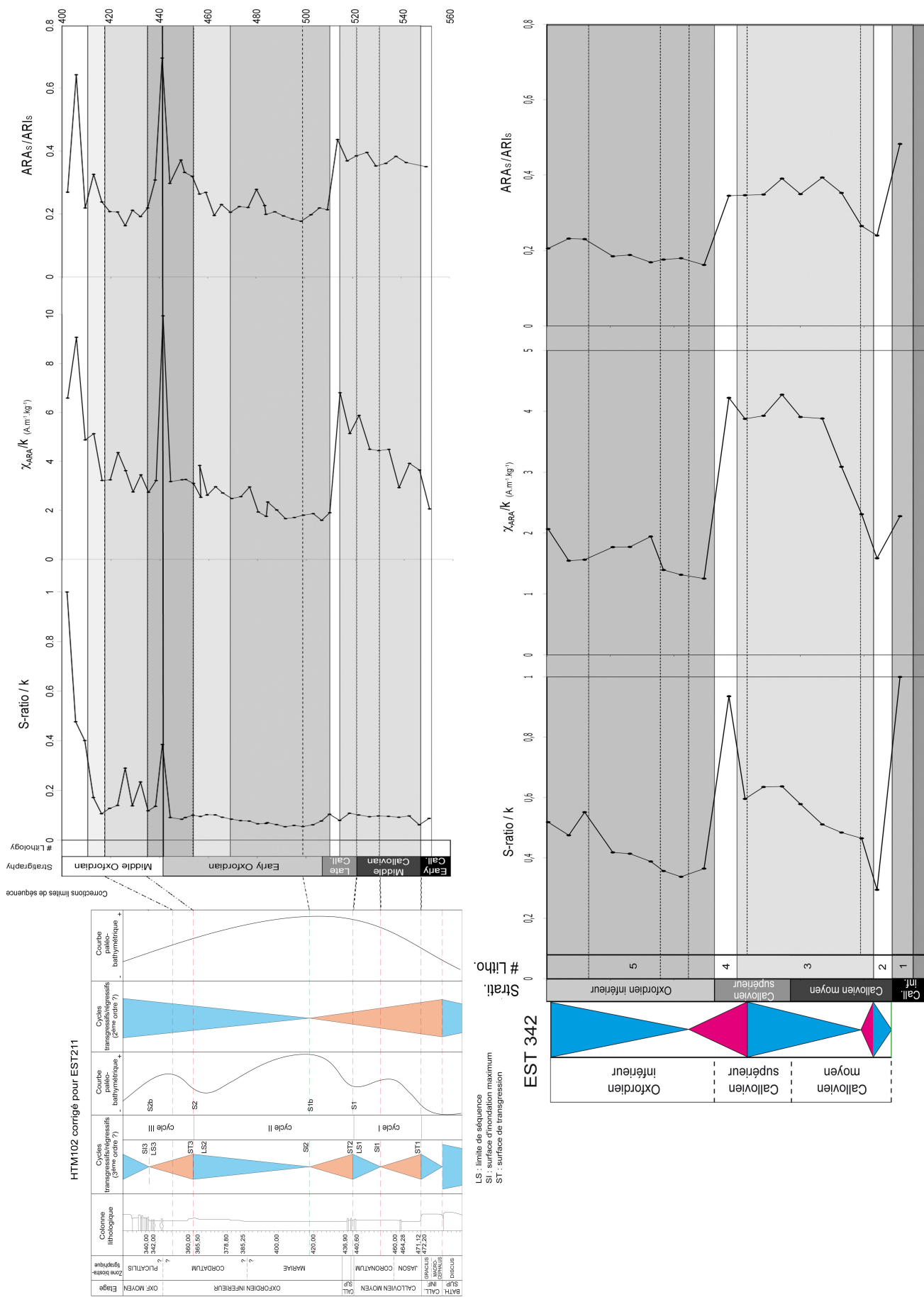


Figure VI.3: Corrélation des paramètres magnétiques de tailles de grains pour les forages EST211 et EST342 avec les évolutions séquentielles du Callovo-Oxfordien.

Cependant, on note que le Callovien (première séquence) est réellement différent de la deuxième séquence où les paramètres de concentration et surtout de taille de grains possèdent de plus fortes valeurs marquant ainsi une intensité d'apport de silt plus important pendant le Callovien moyen et une partie du Callovien supérieur. Il semble donc que la période du Callovien soit touchée par une dynamique sédimentaire différente de l'Oxfordien inférieur et moyen.

Par ailleurs, on peut noter quelques mètres au-dessus du maximum d'inondation SI2, dans l'Oxfordien inférieur des deux forages, un léger saut en taille de grains et une augmentation de K et ARA probablement due à un court épisode de décharge de silt.

Les cycles du troisième ordre ne sont pas évidents à observer dans le Callovien compte tenu du maillage de l'échantillonnage des forages mais certains paramètres semblent plus sensibles que d'autres. La susceptibilité et l'ARN semblent les plus aptes à bien dissocier les cycles transgressifs-régressifs en relation avec des apports plus ou moins importants de grains rémanents avec le niveau marin relatif ou des changements de la force des courants marins.

Si on se risque à tenter des interprétations paléoclimatiques, les données de matière organique faunique et de flore (Hautevelle, 2006); les données de δO^{18} , de certains fossiles (Lathuillère, 2006) permettent d'évaluer les variations climatiques en terme d'aridité et de température du climat et de l'eau. La période du Callovo-Oxfordien correspond globalement à un épisode de refroidissement dans une tendance du Jurassique à se réchauffer. Le Callovien inférieur est donc le début du refroidissement associée à une faune boréale et un début d'apports argilo-silteux, qui va se poursuivre jusqu'au début de Callovien supérieur devenant alors légèrement plus chaud. Au Callovien supérieur, le réchauffement peut très bien diminuer l'apport de silt et favoriser l'apport de carbonates, formant les niveaux argilo-carbonatés associés à des faunes Téthysiennes mais de nombreux paramètres restent à vérifier pour conforter ou infirmer cette interprétation. A l'Oxfordien inférieur le refroidissement semble s'accentuer et peut favoriser un apport important d'argiles et des faunes boréales dans une phase paradoxalement de haut niveau marin relatif, dont l'origine reste encore une énigme. La quantité de silt est donc plus diluée dans ces niveaux que ceux du Callovien moyen en particulier. A l'Oxfordien moyen s'amorce le début du réchauffement et la mise en place progressive de la plateforme carbonatée marqué par un enrichissement progressif du taux de carbonate dans un contexte plus aride. Cette aridité limite le couvert végétal des massifs proximaux et favorise l'érosion et donc le flux de silt et argiles que l'on retrouve à travers les paramètres magnétiques de concentration (K, ARN, ARA, ARI). Le pic en minéraux ferrimagnétiques (i.e. en silt) est donc peut-être lié à cet aspect?

Les mêmes tendances des spectres de coercivité étant retrouvées sur l'ensemble de la formation, montrent d'une part que la co-existence des sulfures et des oxydes de fer est présente; et d'autre part, que malgré les différentes tailles de grain, flagrante selon les lithologies, elles n'influencent en rien le comportement des populations des spectres de coercivité. Le signal de ces deux populations de nature différente est donc réelle et n'est pas liée à des effets de taille de grain ou d'autres artefacts.



Le climat peut donc être le facteur dominant sur l'érosion des massifs environnants, vecteurs du taux de silt et d'argile dans les lithologies par rapport aux carbonates. Il est bien évident que d'autres mécanismes peuvent jouer tels que de courants marins qui reprennent des argiles anciennes dans une phase pourtant chaude et non favorable à leur formation sur les massifs. D'autant plus que les variations eustatiques semblent ne pas parfaitement corrélées avec les caractères des apports terrigènes. Des cycles de types Milankovitch sont peut-être à mettre en parallèle, ainsi que des courants marins qui changent de direction et d'intensité selon la configuration paléogéographique. Le climat n'est pas forcément en relation avec la température des eaux. Une faible tranche d'eau peut-être chaude dans un climat très froid au latitude tropicale par exemple. La tranche d'eau est donc aussi un paramètre en prendre en compte dans les interprétations pour réussir à intégrer toutes les données afin d'aboutir à un seule et unique modèle de dynamique sédimentaire dans le secteur d'étude.

6.2. Le message des anisotropies magnétiques

Les données directionnelles magnétiques (Fig. VI.4) montrent une direction d'anisotropie linéaire NE-SO constante dans le plan de litage horizontal des argilites pendant l'Oxfordien inférieur pour les deux forages EST211 et EST342, à l'exception du maximum d'inondation de la deuxième séquence (ou séquence médiane) où une direction NO-SE de courte durée se marque. Cette direction particulière est exactement synchrone avec l'arrivée d'ammonites téthysiennes du sud-est (Thierry et al., 2006) qui marque clairement une connexion avec la bassin du sud-est et semble apporter un fort taux de minéraux terrigènes. Un sens d'apports terrigènes semble se dessiner du SE vers le NO dans le site d'étude et uniquement pendant cette phase de maximum d'inondation maximum.

Le passage de l'Oxfordien inférieur-moyen marque aussi un changement de direction NO-SE en relation avec un apport de grains ferrimagnétiques de grandes tailles et synchrone au minimum de niveau marin relatif de troisième ordre de la troisième séquence avec une aridité du climat plus marquée. Les apports semblent donc venir du NO ou SE, si on raisonne en terme de direction de courant de dépôt (Ellwood, 1978). En effet, l'origine des linéations magnétiques peut venir de deux grands mécanismes. L'un peut-être lié à des déformations cisailantes en direction du maximum de pente, ou vers le dépo-centre, ou d'une direction tectonique régionale en même temps que joue la compaction de la pile sédimentaire, alignant les grains magnétiques parallèlement à cette direction cisailante dans le plan de litage. Mais aucuns paramètres, ni clichés aux microscopes de toute catégorie ne soulignent la moindre déformation. L'autre mécanisme qui semble le plus probable est l'effet de courants laminaires marins qui orientent les particules parallèlement à ces directions de courants marins.

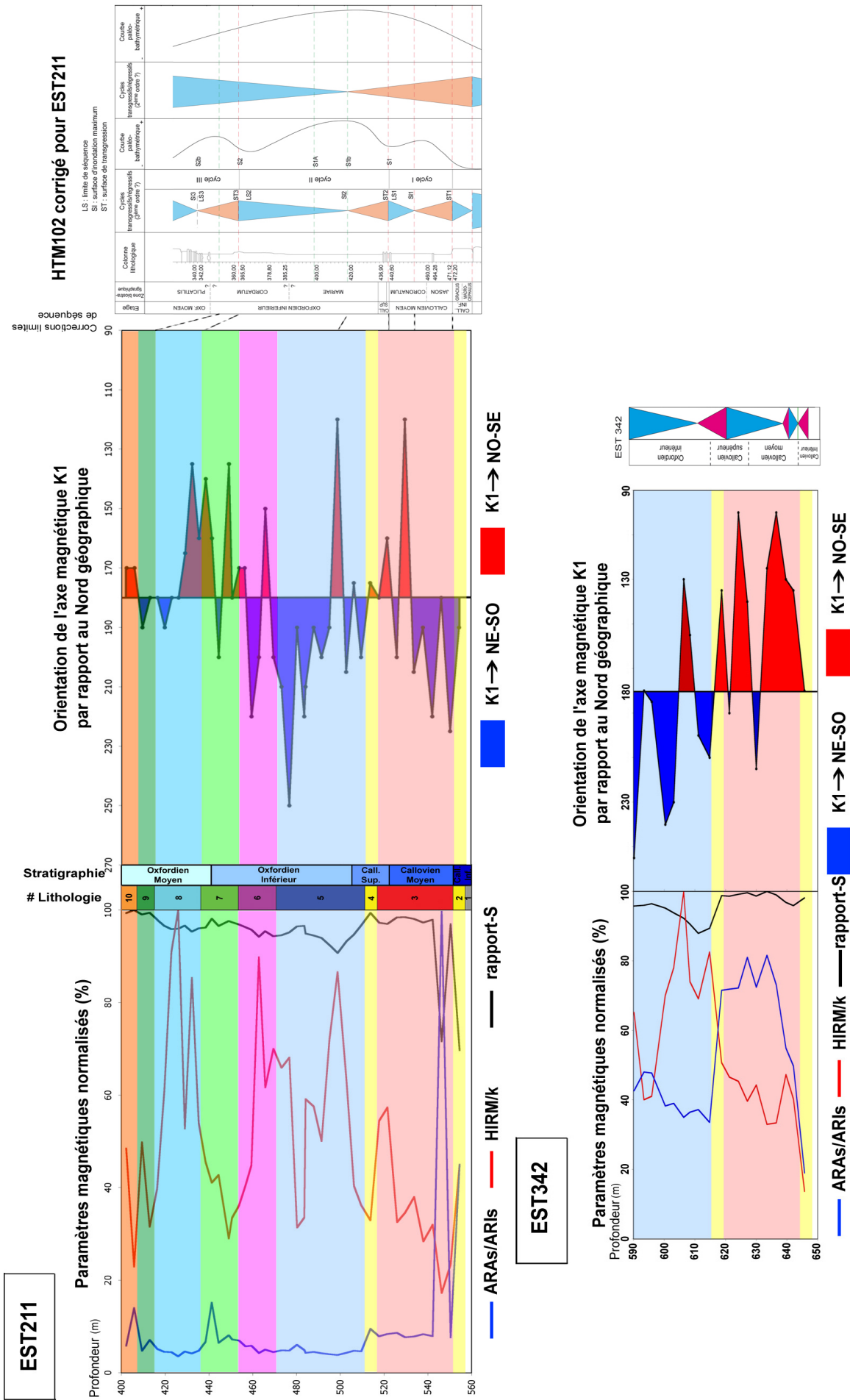


Figure VI.4: Couplage des paramètres magnétiques et d'orientation de l'axe maximum de susceptibilité dans le plan de litage, par rapport au Nord, en comparaison des cycles de stratigraphie séquentielle observés pour les forages EST211 et EST342.



Cette hypothèse de courant marin qui oriente les particules sédimentaires semble être renforcée par les observations des orientations d'ASM au Callovien qui sont différentes d'un forage à l'autre (Fig. VI.5a et b). La phase transgressive de troisième ordre du Callovien (séquence inférieure) (Fig. VI.5a) porte une linéation magnétique NO-SE dans EST342 et NE-SO dans EST211. Ces directions changent dans EST211 au passage de la phase régressive de cette même séquence (Fig. VI.5b) qui devient NO-SE. Si une déformation était présente, elle devrait toucher de la même manière l'ensemble du Callovien et présenter alors les mêmes directions. L'orientation des particules par les courants marins est donc la meilleure hypothèse avec des courants très faibles car la linéation est en % excluant tout effet de turbulences (ou vortex) capable d'orienter les particules perpendiculairement à la direction de courant. Ces données d'apports sont confirmées par l'étude de l'anisotropie des particules ferrimagnétiques obtenues par AARA (Fig. IV.35) qui montrent une direction NNO-SSE dans des lithologies plus ou moins silteuses alors qu'elles sont inexistantes dans les niveaux carbonatés pauvres en grains ferrimagnétiques.

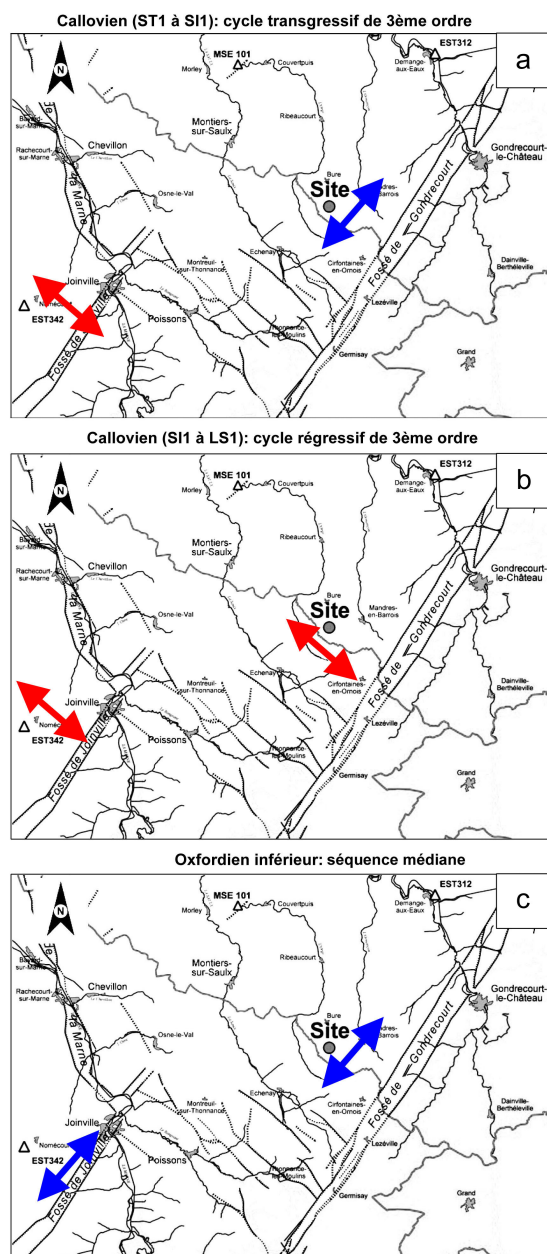


Figure VI.5: Orientation des linéations magnétiques mesurées pour les forages EST211 (sur site) et EST342 dans trois périodes distinctes par la stratigraphie séquentielle et reportée sur les cartes géographiques du site.

Si les courants marins sont alignés entre le site de dépôt et la source d'apport, ce qui ne semble pas déraisonnable d'après la morphologie de la plateforme de dépôt qui était plus ou moins plane et de pendage $< 1^\circ$, les données de nature minéralogique (Pellenard, 2003; Gaucher et al., 2004; Esteban et al., à soumettre) et la direction des linéations magnétiques (Esteban et al., 2006) permettent de proposer un modèle géodynamique sédimentaire que l'on peut replacer sur la carte de Dercourt et al. (1985) (Fig. VI. 6). Le massif Sub-Alpin, ou Sud-Est (Pellenard, 2003) situé au sud-est du bassin parisien, semble avoir fonctionné grâce au maximum d'inondation de second ordre de l'Oxfordien inférieur apportant les silts et les argiles. Pendant les phases de plus bas niveau marin relatif de l'Oxfordien inférieur et moyen (LS2; Fig. VI.4), les apports semblent venir des directions du Nord et Nord-Est avec les massifs Bohémien et Rhénan drainés par les courants du bras de mer qui sépare ces deux massifs.

L'épisode court de maximum d'inondation de troisième ordre au passage de l'Oxfordien inférieur-moyen (SI3, séquence supérieure) semble avoir favorisé l'érosion ou le remaniement des dépôts sur les massifs du Nord-Ouest (Londres-Brabant) ou la barrière séparant le bassin Parisien du bassin Sub-Alpin au Sud-Est, en apportant les argiles et les silts. Le Callovien semble plus complexe par la différence de direction des dépôts pour la même époque, entre des localisations, certes distantes, mais régionalement proches entre les deux forages (EST211 et EST342). Un effet très léger de proximité aux sources est peut-être la cause de ces différentes directions, avec pour EST342 une direction constante des apports de silts et argiles venant du massif Londres-Brabant, situé tout de même à 300 Km. Le forage EST211 est semble-t-il, plus sujet aux variations marines car il est plus proximal, ou plutôt moins "bassin" que EST342, avec des directions au départ NE-SO riches en argiles venant des massifs du NE et un apport de plus en plus marqué par des silts venant des massifs Londres-Brabant ou Sub-Alpin. Paradoxalement, le forage EST342 est d'après les paramètres magnétiques plus silteux (intensités des paramètres de rémanence et de susceptibilité plus fortes que EST211) pour un site plus bassin et inversement pour EST211 avec une cependant une subsidence plus marquée dans ce secteur du forage EST211. L'interprétation de la dynamique sédimentaire du Callovien "aux yeux du magnétisme" n'est donc pas encore tranchée mais il est clair que le niveau marin et la paléogéographie doivent jouer un rôle important dans la formation des courants qui sont certainement le facteur des origines des distributions des particules dans les argilites et donc des variations du signal magnétique. Les vents portant les particules terrigènes fines en relation avec le climat et la paléogéographie sont aussi des facteurs déterminants dans l'origine des apports d'autant plus que les observations au MEB montrent parfois des quartz éoliens, arrondis et enrobés d'une fine couche d'oxydes de fer.



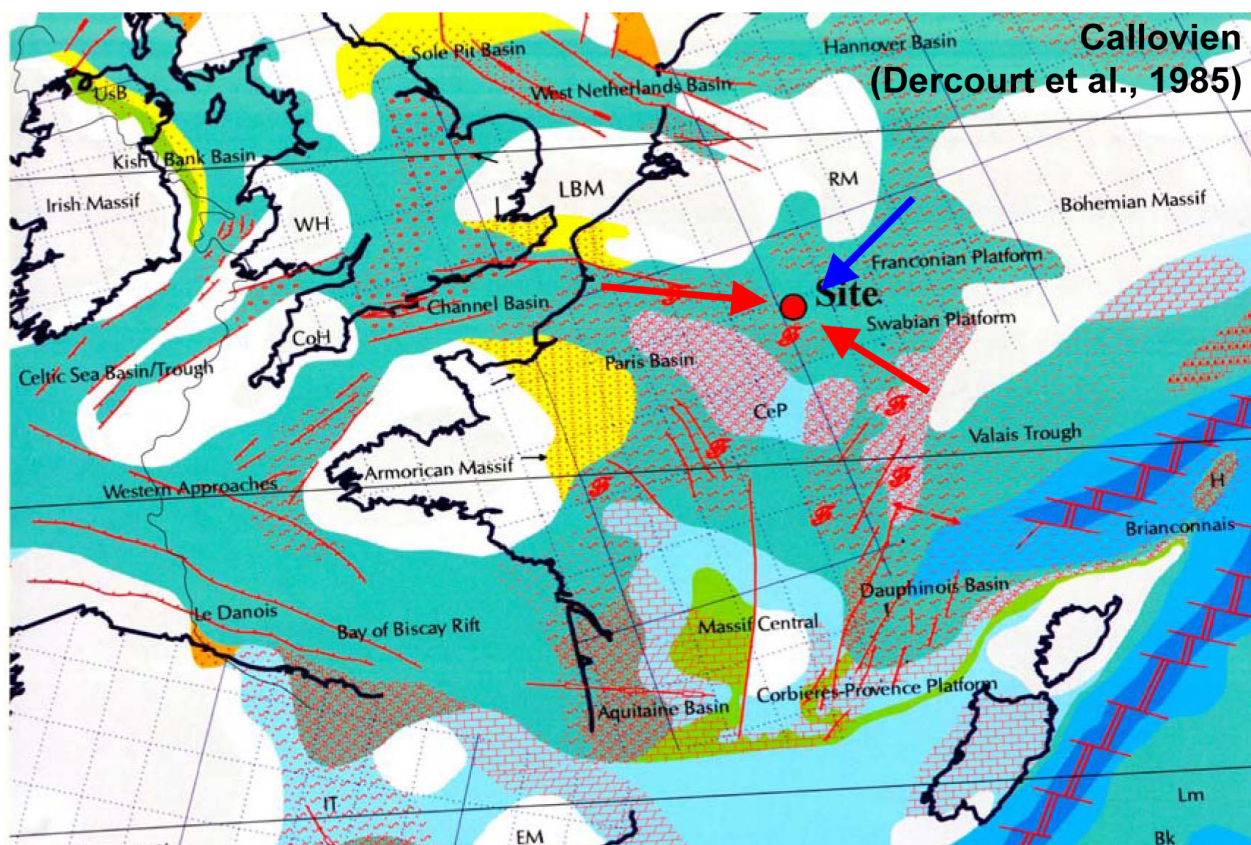


Figure VI.6: Modèle d'interprétation paléogéographique des données magnétiques sur les sources des apports des minéraux.

6.3. Message des anisotropies de porosité

Les données d'injections mercure et au ferrofluide ont permis de caractériser la structuration des argilites en couplant ces mesures aux données magnétiques. La porosité totale s'est révélée influencée largement par la nature des roches avec des porosités d'environ 20% dans les niveaux plus argileux et de 5 à 13% dans les niveaux plus carbonatés et silteux. L'orientation de cette porosité a été approchée par injection mercure orientée parallèlement aux trois axes magnétiques mesurés par ASM. Cette approche a permis de constater que les niveaux carbonatés étaient peu anisotropes pour une porosité qui reste plus forte dans le plan de litage. Les niveaux plus argileux présentent un maximum de porosité en relation avec la disposition des plaquettes d'argiles, c'est à dire dans le plan de litage et dans la direction NE-SO. Les niveaux plus silteux ont une structure plus complexe avec une porosité maximum verticale malgré des pores d'accès largement inférieurs aux niveaux argileux et carbonatés, que nous avons interprétés par la présence, observées au MEB et microscopie optique, de fentes de tension sub-verticales. Ces structures sont probablement liées à des chemins de percolation formés pendant la phase de compaction de l'argilite dans ces niveaux.

Les injections au ferrofluide ont confirmé ces données avec, pour les niveaux plus silteux, un triple réseau où le macro-réseau est lié aux fentes de tension subverticales, un meso-réseau lié aux silts dans le plan de litage et orienté NO-SE et enfin un micro-réseau lié aux argiles dans le plan de litage et orienté NO-SE. Ces aspects confirment donc que le réseau poreux est fonction de la nature des minéraux, à l'exception des niveaux silteux plus complexes, et surtout fonction de leur organisation héritée des courants de dépôt qui n'est pas masquée malgré la compaction relativement importante.

Les modélisations de la porosité avec le logiciel Pore-Cor ont été appliquées uniquement dans les niveaux de transition (lithologie 4) et qui a permis de proposer une perméabilité proche de celles mesurées dans le Callovo-Oxfordien. Ce modèle est donc exploitable et semble prometteur dans son avenir proche pour approcher les paramètres d'anisotropie de la perméabilité, si elle existe.

6.4. Conclusion

En conclusion, par l'étude des forages du Callovo-Oxfordien au niveau (ou à proximité) du Laboratoire de l'Andra, les approches magnétiques et pétrophysiques permettent de comprendre l'évolution de la minéralogie magnétique où coexistent sulfures et oxydes de fer. On met en évidence une période particulière (Callovien moyen et passage Oxfordien inférieur-moyen; le RIO des pétroliers), plus riche en oxydes de fer détritiques liée peut-être à un léger réchauffement climatique dans un contexte général plutôt froid pendant le Callovo-Oxfordien. La question des courants marins plus ou moins forts pouvant apporter les silts et/ou l'effet du climat pour expliquer l'origine de ces apports terrigènes reste à analyser pour trancher sur ces mécanismes. Au point de vue textural, les plaquettes d'argile de ces argilites sont disposées selon un plan sub-horizontale. Dans ce plan, ces plaquettes s'orientent autour d'un axe de zone (linéation "transverse") dont l'orientation est N-S et reste constante pendant l'ensemble du Callovo-Oxfordien (~4,5 Ma), à l'exception des zones plus riches en oxydes de fer (Callovien moyen et passage Oxfordien inférieur-moyen) où elle est orientée selon NO-SE.

Cette organisation est mise en évidence par les injections au mercure et au ferrofluide: les lits plus argileux ont une forte porosité et un réseau poral lié à l'organisation des argiles avec une anisotropie transverse maximale orientée selon N-S. Les niveaux les plus riches en oxydes de fer (i.e. en silt) possèdent une anisotropie maximale selon la verticale et une porosité totale plus réduite. L'ensemble de ces organisations semble lié aux directions des courants marins, elles-mêmes fonctions des variations du niveau marin relatif, qui apportent et orientent les particules sédimentaires avec des apports des massifs du NE pour les argiles et des apports plus silteux pour les massifs Londres-Brabant et Sub-Alpin, si les courants restent alignés entre la source et le site de dépôt; ce qui semble très probable d'après la morphologie de la plateforme de dépôt.



Il reste à expliquer l'origine d'un maximum d'inondation de troisième ordre dans la seconde séquence dans une période pourtant froide. Le mécanisme qui explique l'origine de l'organisation des particules des argilites poussent vers des effets de courants marins mais le mécanisme à l'origine des apports n'est pas clairement tranchée, le climat et/ou les courants marins en font certainement partis. La prochaine étape sera maintenant de comparer ces résultats avec ceux des argilites extraites des galeries, pour vérifier si on retrouve les mêmes minéralogies et organisations de ces particules et surtout pour observer l'effet de l'endommagement par le creusement des galeries au cours du temps. Ceci afin de permettre des calculs de perméabilité et de conductivité hydraulique pouvant aider les simulations des "écoulements" des fluides à long terme autour du laboratoire d'étude.

Chapitre 7

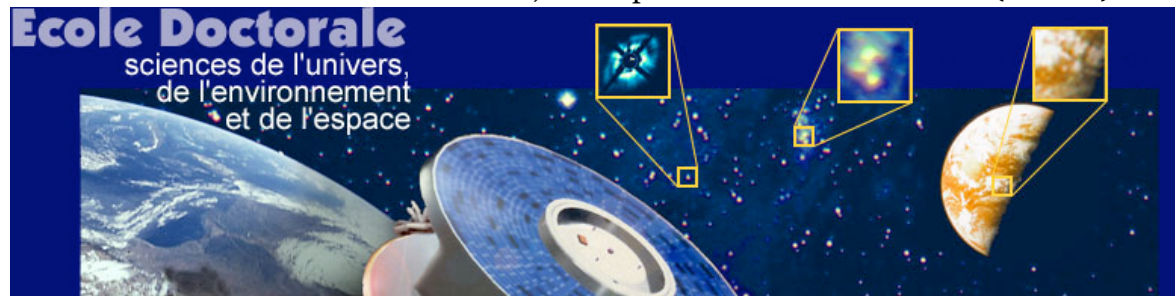
Valorisation des compétences



Chapitre 7 – Valorisation des compétences-un nouveau chapitre de la thèse



Ecole doctorale: Sciences de l'Univers, de l'Espace et de l'Environnement (SDU2E)



Spécialités: Géophysique appliquée/
/magnétisme des roches/
/pétrophysique.

Organismes de rattachement:

Université Paul Sabatier de Toulouse III (UPS)
Laboratoire des Mécanismes de Transferts en Géologie (LMTG)
Ecole et Observatoire des Sciences de la Terre (EOST)
Agence Nationale pour la gestion des Déchets Radioactifs (Andra).



Mentor de ce chapitre:

Robert Martinez (Cabinet Progress)

Sujet de thèse: Anisotropies magnétique et de porosité des argilites du Callovo-Oxfordien du Laboratoire souterrain de l'Andra (Meuse/Haute-Marne, Bassin de Paris).

Sous la direction scientifique de: Jean-Luc Bouchez, Yves Géraud et Alain Trouiller.

Date de soutenance: le 21 septembre 2006

Nouveau Chapitre de thèse

7.1. Contexte général du stockage des déchets

Le constat de ma génération est que nous devons faire face aux conséquences d'une vie sans limites d'utilisation de l'énergie de nos aïeux, sans prendre conscience d'une gestion à long terme de l'environnement. De nombreux pays, dont la France, pour des raisons évidentes de sécurité pour l'environnement et pour l'Homme, se doivent maintenant de trouver rapidement un moyen de se protéger des produits nocifs issus de l'énergie d'origine nucléaire. En ce sens, l'Agence nationale pour la gestion des déchets radioactifs (Andra) créée par le gouvernement Français, s'est dotée de moyens pour répondre à la problématique de gestion des déchets des combustibles des centrales électronucléaires et autres produits hautement radioactifs.

Le projet que se propose de faire l'Andra s'appuie sur les propriétés de confinement de roches sédimentaires argileuses en milieu géologique profond naturel. Le secteur du Nord-Est du bassin Parisien est donc étudié pour tester la faisabilité de stockage des déchets radioactifs aux travers de forages et du laboratoire Andra situé à 490 m dans les couches argileuses du site de Meuse/Haute-Marne.

Pour répondre à cette problématique, l'Andra utilise toutes les compétences scientifiques, des laboratoires publiques et privés nationaux et internationaux, que se soit en mathématique, en modélisation, en chimie, en physique, en géologie et même en philosophie. Tous ces domaines sont nécessaires pour vérifier l'état de la roche avant et après entreposage des déchets pour estimer à moyen et long terme l'évolution du site de stockage en terme de sécurité, et estime aussi les conséquences sociétales de ce programme.

7.2. Compétences des laboratoires d'accueil

Les laboratoires de Toulouse et de Strasbourg possèdent des compétences en pétrophysique pour étudier l'état structural de la roche (organisation des minéraux, des vides, des fractures) et son évolution dans tout le niveau géologique argileux encadrant la zone potentielle de stockage. Le département de magnétisme de Toulouse possède les outils pour travailler sur la caractérisation de la minéralogie et de son organisation, et le laboratoire de Strasbourg possède les outils d'injection de mercure et son savoir faire pour évaluer les aspects de répartition des vides dans la roche et les conséquences sur le transfert des fluides à court et long terme.

7.3. Projet de thèse

Mon sujet de thèse s'est donc naturellement intégré dans cette problématique en se proposant de comprendre l'origine de l'évolution structurale de ces roches et ses conséquences sur ses propriétés de confinement, fondamentales à connaître pour un tel projet de stockage. Les outils magnétiques disponibles à Toulouse permettent de caractériser la minéralogie complexe et les processus chimiques et physiques qui ont amené à leur existence et leur organisation dans l'espace. Son évolution dans la couche géologique permet de remonter à l'environnement de l'époque de formation de la roche et

le climat qui y régnait en relation avec les influences du niveau marin. Ces aspects ont une influence majeure sur la forme et la répartition des vides mesurés aux travers des injections sous haute pression de mercure et à travers le développement d'une nouvelle technique de haute pression qui consiste à injecter un fluide magnétique dans les vides de la roche et mesurer la forme, la géométrie des vides et l'organisation de la porosité accessible, en couplant les outils d'injection de Strasbourg (et d'un dispositif expérimental à Toulouse) et les outils du magnétisme. L'intégration de ces données permet de proposer des modèles structuraux de la roche pour faire des simulations mathématiques de circulation des fluides à l'aide d'un tout récent logiciel de modélisation de la porosité et de la perméabilité de la roche, encore en plein développement.

7.4. Déroulement, gestion et coût des travaux de la thèse

Ce type de roche, par sa complexité et une connaissance encore trop limitée de la physique et la chimie qui y joue, impose d'acquérir rapidement toutes les connaissances des mécanismes qui peuvent entrer en jeu pour prévoir le comportement des signaux et des paramètres qui vont être mesurés et dont le but est d'aboutir à une ou plusieurs interprétations.

Le début de chaque année a été introduit par une réunion composée de mes directeurs de thèse, du coordinateur de l'Andra (Dr Alain Trouiller) et d'un membre extérieur (Pr Yves Gueguen), faisant l'état des lieux des données et des interprétations proposés par mes travaux et proposant un planning pour l'année qui suit. Les interprétations et les données de chaque thèmes abordés dans la thèse ont généralement abouti à une conférence ou un colloque, parfois international, ainsi qu'à une publication internationale pour "valider" mes résultats.

La première étape à cette étude a été de m'informer de l'état des connaissances du milieu étudié particulièrement étudié par l'Andra et d'autres sociétés. La bibliographie d'articles scientifiques et de nombreux rapports m'ont permis de comprendre le cadre géologique du site avec les différents évènements géologiques qui ont influencé ces roches. J'ai alors une image synthétique des évènements qui peuvent avoir formé certains caractères particuliers de ces roches. Cette étude bibliographique m'a donc permis d'intégrer les connaissances et les limites de ces dernières dans le site d'étude et fourni un premier outil pour permettre de focaliser certains points de mon étude, pour tenter de répondre à des questions encore ouvertes. Pendant cette première étape, j'ai effectué de nombreux voyages au siège de l'Andra pour récupérer des rapports ou des mesures sur leur base de données ainsi que des prises de contacts avec certains laboratoires ou universités qui ont participé aux rapports lus tels que l'université de Jussieu, le laboratoire de ERM, Nancy, Nantes, Poitiers et bien d'autres.

A l'étape suivante, j'ai "calibré" les paramètres que je voulais mesurer pour en tirer des méthodes d'étude. J'ai donc commencé par une évaluation, sur quelques échantillons issus de certaines parties de la formation d'étude, proposés et envoyés par l'Andra, sur la sensibilité des mesures vis à vis des appareils expérimentaux. La faible quantité de minéraux magnétiques dans la roche et l'incapacité de pouvoir les observer optiquement avec les appareils classiques, m'a amené à apprendre toutes les techniques connues du magnétisme pour caractériser la nature, la concentration, la taille des minéraux présents; ainsi que d'évaluer les interactions et les effets de tous ces paramètres mutuels sur le signal général mesuré. J'ai appris à utiliser toutes ces nombreuses manipulations et toutes les possibilités des appareils de mesures jusqu'à leurs extrêmes limites. Le besoin de réunions de groupe s'est fait ressentir au sein de l'équipe de magnétisme dans laquelle je travaille, pour répondre à certaines de mes questions et aussi pour ouvrir des débats sur les possibles



mécanismes qui jouent dans mes roches et les premières interprétations que je peux en tirer, tout au long de ma thèse.

J'ai d'ailleurs exposé mes premiers résultats dans un colloque à la Grande-Motte, consacré aux travaux scientifiques effectués par tous les laboratoires nationaux et internationaux sur le stockage des déchets nucléaires du programme de l'Andra. Ce colloque a permis un échange d'idées et de propositions expliquant mes mesures, avec des scientifiques dans le domaine, qui ont une bonne expérience du milieu sédimentaire et qui ont une excellente vision des évolutions et des mécanismes qui peuvent avoir eu lieu dans la formation.

La partie plus "pétrophysique" au travers des mesures de porosité et de son organisation dans la roche a été abordée via des tests de mise en place de dispositif de mesure expérimentaux sur les échantillons au préalable mesurés avec les méthodes magnétiques. Plusieurs voyages à Strasbourg ont été nécessaires pour ajuster et tester mes protocoles de mesure, dont le protocole final a bien été validé et corrèle bien avec les mesures magnétiques.

Par la suite, le développement d'une cellule de mise en haute pression a été construite dans le laboratoire de Toulouse pour injecter sous haute pression des fluides particuliers destinés à donner une image de la forme et de la géométrie du réseau poreux par les méthodes magnétiques. La difficulté majeure était de trouver la bonne vitesse d'injection du fluide dans la roche et surtout de bien protéger les échantillons après injection pour ne pas "polluer" magnétiquement les appareils de mesure. Ce dispositif permet pour la première fois d'injecter un fluide magnétique dans des petits pores de la roche alors que les seules manipulations du genre se sont contentées de tester la faisabilité à pression atmosphérique. J'ai collaboré avec l'entreprise "Metromesure" pour construire la cellule d'injection expérimentale et effectuer quelques changements, afin d'éviter certains problèmes tels que un dégazage trop fort du ferrofluide qui remonte dans les tuyaux et sort du circuit; placement d'une microvalve pour éviter les à coups de pression...

Par la suite, une fois les techniques calibrées et les protocoles de mesures adaptés, j'ai décrit aux ingénieurs et techniciens de l'Andra un protocole d'échantillonnage le long de chaque forage que je voulais étudier, pour avoir une bonne répartition des carottes de roche et surtout bien protéger de l'extérieur. L'idée de comparer des forages est de vérifier si l'évolution de certains paramètres dans la formation se répète entre les forages et donc répond à la question: l'évolution est-t-elle locale ou plus régionale (effet du climat, géographie), ainsi que de vérifier si nos hypothèses d'orientation des particules et des vides sont liées à des courants marins ou liée à des déformations locales ou régionales.

Coût de la thèse:

Un tel sujet est financièrement imposant où seule une entreprise de "bonne taille" est capable d'y faire face. Le coût total du programme Andra est de 3 milliards d'euros. Si on calcule le financement d'un tel projet de thèse, on peut l'estimer de la façon suivante:

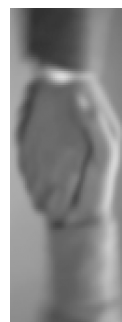
	Coût dédié au projet	Temps utilisé pour la thèse	Durée de vie	Amortissement/an	Coût pour la thèse
Achat matériaux ou dispositifs expérimentaux	32000	30%	10 ans	3000	9000
Frais d'infrastructure (chauffage, électricité...)	1400/an	1/360 personnes	/	1400	4200
Ressources humaines (salaires dont charges sociale et patronale)	/	20% ingénieur; 10% professeur de classe exceptionnelle; 10% maître de conférence; 5% ingénieurs/techniciens services communs	/	30000	90000
Services communs	1500/an	5%	/	1500	4500
Consommable	2000/an		/	2000	6000
Missions	14800	5%	/	4900	14800
Workshop et/ou formations	6000	5%	/	2000	6000
Salaire personnel dont charge sociale et patronale	94500	100%	3 ans	31500	94500
Total/an					76 300€
Total thèse				coût total consolidé:	230 000€

7.5. Compétences et qualités professionnelles

Une telle complexité de support de travail (roche sédimentaire) a demandé non seulement d'intégrer toutes les connaissances et techniques connues dans le(s) domaine(s) mais aussi et surtout d'entrer en communication avec de nombreux spécialistes et laboratoires du monde entier.

7.5.1. Les compétences techniques

- Analyse du signal: transformée de fourier analytique et numérique pour les analyses de l'anisotropie optique d'objets et de minéraux spécifiques observés.
- Mesure de perméabilité au gaz sur des dispositifs expérimentaux à l'EOST de Strasbourg.
- Logiciel de modélisation de la porosité et de la perméabilité en 3D avec Pore-Cor, où j'ai été formé sur ce logiciel lors d'un Workshop à Plymouth (UK).
- Mesure de porosité sur porosimètre automatique et manuel de Micromeritics et analyse des distributions des pores, de la géométrie des pores, diamètre seuil de la porosité, porosité totale et porosité piégée qui ont donné lieu à une publication de rang A sur une introduction dans la méthodologie de la comparaison des injections au mercure avec les mesures magnétiques, dans la revue de Physics and Chemistry of the Earth.
- Conductivité thermique, cartographie thermique et traitement du signal thermique via le nouveau appareil Thermal Conductivity Scanning, de l'équipe Russe dirigée par le Pr Popov.
- Magnétisme environnemental, anisotropies magnétiques et analyses du signal magnétique ayant donné lieu à 2 publications de rang A. L'une sur la minéralogie sensu-stricto et les problèmes de caractérisation de leur nature et les interactions entre différents types de minéraux, dans la revue du Geophysical Journal International et une autre publication qui s'est consacrée à l'organisation de la minéralogie et ses interprétations en termes d'origine de cette organisation dans la revue des Comptes Rendus de l'Académie des Sciences de Paris.



- Expertise en injection de ferrofluide sous haute pression et analyse magnétique pour comprendre la forme et l'organisation de la porosité dans la roche jusqu'à des petits diamètres de pores (μm). Cette méthode a donné lieu à une publication de rang A au *Geophysical Research Letters* sur la relation entre les méthodes d'injection au mercure et au ferrofluide comparées aux mesures magnétiques et qui a permis de construire des modèles de réseau poreux en fonction de la nature de la roche.

- Les approches optiques m'ont été initiées à Toulouse et Strasbourg avec les microscopes optiques polarisant, le microscope électronique à balayage d'ancienne et nouvelle génération et le microscope à force atomique pour analyser la minéralogie des roches.

7.5.2. Gestion de projet

- La gestion des missions dans des laboratoires nationaux m'a appris à développer et mener à terme un projet par l'intermédiaire de réunions téléphoniques ou en tête à tête avec l'ingénieur ou le professeur compétent du laboratoire d'accueil, par la rédaction précise du projet avec le calcul du temps d'utilisation des machines, du personnel, le financement, le logement et la logistique à mettre en oeuvre. Expliquer clairement ce que l'on cherche et ce que l'on veut aux personnes compétentes a aussi fait parti du bon déroulement des missions d'expérimentations dans ces laboratoires pour réussir la mission.

- La préparation de certaines manipulations expérimentales avant les missions a été un bon enseignement en apprenant le fonctionnement de la machine que j'utilisai et que je ne connaissais pas aux travers des explications des ingénieurs compétents.

7.5.3. Communication

- Communication scientifique dans des colloques et conférences nationales et internationales (Colloque Andra et GdR FORPRO à la Grande-Motte; IAGA à Toulouse; Journée des doctorants de l'Andra et à mon laboratoire de Toulouse); workshops avec les meilleurs spécialistes du monde. J'ai rencontré à Santa Fe (USA) pendant un workshop sur les derniers outils et analyses magnétiques, les plus grands spécialistes tels que Lisa Tauxe, Pierre Rochette, Subir Banerjee... qui m'ont montré le niveau et le professionnalisme inébranlable à un tel rassemblement de chercheurs de haut niveau. D'autres workshops comme celui de Cargèse (Corse) sur les fracturations et les milieux poreux m'ont permis de croiser et discuter de mes travaux avec des personnalités telles que Pr De Marsily, David Braun... qui sont des références dans les écoulements de fluide dans les roches ou d'autres chercheurs d'entreprises (EDF, GDF...).

- Enseignements à l'Université de Toulouse, sur des aspects minéralogiques et sédimentologiques qui touchent directement mon domaine de compétence, et ont confirmé mon objectif de faire de l'enseignement. J'y ai constaté mon "feeling" auprès des étudiants qui m'ont remercié pour mes enseignements clairs et ma sympathie. J'ai même réussi à faire passer ma passion en transformant certains étudiants destinés à la biologie, à de la géologie et de la géophysique, ce qui est à mes yeux d'un certain exploit!

7.5.4. Diplomatie

Aspects politiques: j'ai participé à plusieurs reprises et dirigé des réunions sur des discussions des points sensibles liés aux activités propres du CNRS (Etats généraux de la science). Mon sujet naturellement sensible socialement parlant et mon goût à m'impliquer dans la vie des laboratoires et la science au sens large, m'a amené à être représentant des doctorants au conseil scientifique de l'OMP (organisation des laboratoires des sciences de la Terre et de l'Univers de Toulouse) et représentant des doctorants au conseil de mon Ecole doctorale. Un discours maîtrisé et réfléchi pour ne pas froisser ou développer chez certains des rancœurs sur des sujets plus ou moins sensibles rencontrés dans ces réunions ont été un outil fondamental à acquérir rapidement. La diplomatie s'est donc révélée être un outil majeur à utiliser durant ce type de réunions et même pendant les colloques où mon discours était vérifié par l'Andra pour ne pas ouvrir des portes de conflits avec les journalistes, les écologistes et les chercheurs impliqués dans ce programme de stockage.

7.5.5. Language

- La langue anglaise a été un outil de communication important et utilisé dès le début de ma thèse aux travers des publications scientifiques ou des rapports à lire, aux travers des conférences et colloques internationaux et pour les discussions avec les spécialistes pendant les workshops et les conférences. Si mon anglais était catastrophique à mon entrée en thèse, il est maintenant plus souple et plus correct.
- Logiciels d'informatique et de bureautique: Excel et ses macros sous le langage visual basic, Word, Photoshop, Illustrator, Stéréonet, Intercept, Powerpoint.

7.5.6. Qualité personnelle

- Médiateur en relations humaines pour corriger des problèmes ou des conflits
- Grande ouverture d'esprit et curieux dans la science en général.
- Ouvert pour aider d'autres personnes dans leurs recherches.
- Aisance en communication publique

7.6. Résultats et impacts de la thèse

L'objectif initial du projet d'étude était de caractériser la minéralogie magnétique et son implication dans l'organisation structurale de la roche, pour les simulations thermo-hydro-mécaniques, ainsi que de proposer des reconstructions paléo-sédimentaires et paléo-géographiques. L'objectif est atteint puisque la minéralogie et son évolution au sein de la formation ont été identifiées et dont son organisation a permis de proposer des histoires paleo-géographiques et sédimentaires en relation avec le climat et le niveau marin. Les résultats de pétrophysiques ont permis via les techniques d'injection au mercure et au ferrofluide de proposer des modèles de roche pour simuler des perméabilités impossibles à mesurer par d'autres outils.



Ces mesures sont comparées avec d'autres approches originales et d'autres techniques dans des laboratoires différents (cartographie thermique à Strasbourg, sismique à Nancy, magnétisme sous champ fort à Marseille). La communication et la diplomatie, pour un sujet aussi sensible socialement parlant, se sont donc naturellement développées pour répondre à ces objectifs dans les conférences ou pendant ma thèse lors des réunions de l'équipe du laboratoire, du laboratoire entier ou de l'école doctorale. Durant mon doctorat, j'ai ainsi acquis rapidement une culture scientifique de pointe en développant ma minutie et de nombreux tests de vérification de l'anisotropie de mes roches qu'elles soient thermiques, magnétiques ou par porosimétrie mercure et ferrofluide et les conséquences sur les interprétations.

Au travers de ma thèse, mes deux laboratoires ont, pour la première fois, travaillé sur de nouveaux supports (roches sédimentaires) et ont montré leur capacité à acquérir des mesures et des résultats permettant des interprétations géologiques et géophysiques. Les nouveaux appareils et les logiciels novateurs ont montré leur possible développement dans un futur proche. Strasbourg et Toulouse sont maintenant perçus comme d'excellents experts dans le magnétisme et dans la pétrophysique, ayant de bonnes idées pour répondre à des problématiques aussi complexes que difficiles. Les résultats d'anisotropies de la roche sédimentaire, la caractérisation de la nature des minéraux et leurs interprétations, leur a permis de s'intégrer dans un programme national particulièrement original et porteur dans tous ces aspects et qui est maintenant parmi les plus abouti de tous les pays engagés dans ce type de programme de stockage.

7.7. Pistes professionnelles

Je suis maintenant capable de proposer mes compétences que ce soit en domaine privé comme dans le domaine public. Mon projet à cours terme est un post-doctorat au Canada (Colombie Britannique, Vancouver) sur le développement de techniques de prospection de poches d'hydrates de gaz au fond des océans, aux travers des outils magnétiques. Ce post-doctorat a été un appel d'offre mondial dont j'ai été accepté et confirme la "lisibilité" de mes compétences dans ce domaine scientifique et l'attraction de mon profil, original, puisque je possède une double compétence en magnétisme des roches et en pétrophysique.

A plus long terme, je proposerai mon expertise et les outils développés au Canada, aux entreprises de prospection de gaz (GDF/EDF pour la France) et je postulerai en parallèle aux concours de la fonction publique pour répondre à mon désir de faire de l'enseignement. Je définirai mon implication dans l'enseignement et/ou dans celui de la recherche publique ou privée, en fonction des opportunités qui s'offriront à la suite du post-doctorat.

Bibliographie



Bibliographie

A

- Aharonov, E., Rothman., D.H. and Thompson, A.H. (1997). Transport properties and diagenesis in sedimentary rocks: the role of micro-scale geometry. *Geology*, 25, 547-550.
- Akimoto, S., Katsura, T. and Yoshida, M. (1957). Magnetic properties of the $\text{Fe}_2\text{TiO}_4\text{-Fe}_3\text{O}_4$ system and their change with oxidation. *J. Geomag. Geoelectr.*, 9, 165-178.
- Al-Tabbaa, A. and Wood, D.M. (1987). Some measurements of the permeability of kaolin. *Geotechnique*, 37, 499-503.
- Andra, collectif (2005). Dossier 2005 Argile – Référentiel du site de Meuse/Haute-Marne – cinq documents – Andra éd. Déc. 2005. Tome 1 – Volume 1 (Chapitres 10 et 11).
- Andra (2004). Analyses minéralogiques et géochimiques, forages de reconnaissance de la fracturation: EST(FRF)211. Rapport final (RDM), D-RP-OERM 04 009, 419 pp.
- Andra (1999). Référentiel géologique du site de Meuse/Haute-Marne, Rapport A-RP-ADS 99-005/B.
- Andra (1996). Renseignements d'ordre géologique et géophysique disponibles quant au caractère favorable des formations à étudier. Chapitre II, DIR/96/1138.
- André, G. (2003). Caractérisation de la structuration de l'Est du bassin de Paris: discrimination des déformations synsédimentaires mésozoïques. Thèse Université de Nancy1, 308 pp.
- Antéa (1997). Synthèse des connaissances géologiques sur le site de l'Est de la France. Contexte géologique, caractérisation des formations et architecture. Rapport Andra n° D.RP.OANT.97.078 (Gros Y., Le Nindre Y.M. & Donsimoni M.).
- Antéa (1996). Expertise relative à l'ovalisation des forages dans l'Est de la France. Rapport Andra n° B.RP.OANT.96.128 (Heitz J.F.).
- Antéa (1995). Forage HTM102. Etude pétrosédimentaire, granulométrique et stratigraphique des échantillons de carottes. Rapport interne Andra B.RP.OANT.95.018/A.
- ARMINES (2001). Site Meuse-Haute-Marne- Estimation de la variabilité du Vallovo-Oxfordien. Rapport interne Andra D.RP.OARM.01.004/1.
- ARMINES (2001). Site Meuse/Haute-Marne – Interprétation des différentes échelles de variabilité du Callovo-Oxfordien et élaboration d'une stratégie d'échantillonnage en laboratoire souterrain. Rapport interne Andra D.RP.OARM.01.005/1.
- As, J.A. and Zijdeveld, J.D.A. (1958). Magnetic cleaning of rocks in paleomagnetic research. *Geophys. J. R. Astr. Soc.*, I, 308-319.
- Aubourg, C., Pozzi, J.P. and Cairanne, G. (2005). Magnetic monitoring of low-temperature (95°C) transformation in natural clays. *Clays in Natural & Engineered Barriers for Radioactive Waste Confinement*, 2nd International meeting, Tours (France), abstract.

Aubourg, C., Rochette, P., and Bergmüller, F. (1995). Composite magnetic fabric in weakly deformed black shales. *Physics Earth Planet. Int.*, 87, 267-278.

Aurell, M. and Melendez, G. (1988). Upper Jurassic of the Iberian Chain: a synthesis. In *First Oxfordian Working Group Meeting (International Subcommission on Jurassic stratigraphy)*, Ed. G. Melendez. Publication of the Seminar of Paleontology, Zaragoza 2, 5-32.

Ayt Ougougdal, M., Boiron, M.C. and Cathelineau, M., (1996). Paléothermicité des calcaires de l'Est de la France: forage de la Haute Marne (Cirfontaine-en-Ornois). *Rapp. ANDRA, BRP oCRE 96-005*, 48 pp.

B

Balkema (2000). Hydromechanical and thermomechanical behaviour of deep argillaceous rocks: theory and experiments; proceedings of the International Workshop on Geomechanics, Paris, edited by Nasser Hoteit ... [et al.]; Exton, Pa. : A.A. Balkema.

Banerjee, S.K, Elmore, R.D. and Engel, M.H. (1997). Chemical remagnetization and burial diagenesis: testing the hypothesis in the Pennsylvanian Belden Formation, Colorado. *J. Geophys. Res.*, 102, 24825-42.

Banerjee, S.K. (1966). A new model for the cation distribution in titanomagnetites. *Berliner Kolloquium über Gesteins und Paläomagnetismus*, Potsdam, 14-15.

Bashtovoi, V.G. (1996). Statics of magnetic fluids. *Magnetic fluids and applications handbook*. Eds. B. Berkovsky, Bashtovoy. New York, Begell House Inc., 395-464.

Bashtovoi, V.G., Berkovsky, B.M., Vislovich, A.N. (1985). *Introduction to thermomechanics of magnetic fluids*. Moscow, IVTAN, 188 pp.

Bashtovoi, V.G., Ye, T. (1985). On some effects connected with the magnetization drop on the interface between magnetic fluids. *Magnitnaya Gidrodinamika*, 21, 54-60.

Bazylinski, D.A. and Moskowitz, B.M. (1997). Microbial biomineralization of magnetic iron minerals: microbiology, magnetism and environmental significance. In: *Geomicrobiology: interactions between microbes and minerals*. J.F. Banfield and K.H. Nealson, eds., *Rev. Mineralogy*, 35, 181-223.

Ben Ohoud, M. and Van Damme, H. (1990). La texture fractale des argiles gonflantes. *C. R. Acad. Sci. Paris*, 311, 665-670.

Berkovsky, B. and Bashtovoi, V. (1996). *Magnetic fluids and applications handbook*. Eds. New York, Begell House Inc., 832 pp.

Bingham, M. (1996). Microbially mediated iron mineral transformations: A case study in lake Greifen, Switzerland. Ph.D. thesis, ETH Zürich.

Bingham, C. (1974). An antipodally symmetric distribution on the sphere. *Ann. Statist.*, 2, 1201-1225.

Bleil, U. and Dobeneck, T.V. (1999). Geomagnetic events and relative paleointensity records: clues to high-resolution paleomagnetic chronostratigraphies of late Quaternary marine sediments? In: Use of proxies in Palaeoceanography: examples from the South Atlantic. G. Fischer and G. Wefer, eds. Berlin: Springer-Verlag, 635-665.

Bloemendal, J., King, J.W., Hall, F.R. and Doh, S.J. (1992). Rock magnetism of late Neogene and Pleistocene deep-sea sediments relationship to sediment source, diagenetic processes, and sediment lithology. *J. Geophys. Res.*, 97, 4361-4375.

Borglin, S.E., Mordis, G.J. and Oldenburg, C.M. (2000). Experimental studies of the flow of ferrofluid in porous media. *Transp. Porous Med.*, 41, 61-80.

Borradaile, G.J. and Henry, B. (1997). Tectonic applications of magnetic susceptibility and its anisotropy. *Earth Sci. Rev.*, 42, 49-93.

Bouchet, A. et Rassineux, F. (1996). Echantillons d'argiles du forages EST104 : Etude minéralogique approfondie. Rapport intermédiaire n°1. Rapport Andra B.RP.OERM.96.012.

Bouchez, J.L., Mintsami, T., Esteban, L., Siqueira, R. and Scrivener, R. (2006). The tourmaline-bearing granite pluton of Bodmin (Cornwall, UK): magnetic fabric study and regional inference.

Bouchez, J.L. (2000). Anisotropie de susceptibilité magnétique et fabrication des granites. *C. R. Acad. Sci. Paris*, 330, 1-14.

Brakel (Van), J. (1975). Pore space models for transport phenomena in porous media: review and evaluation with special emphasis on capillary liquid transport. *Powder Technology*, 11, 205-236.

Brochwicz-Lewinski, W., Gasiewicz, A., Suffczynski, S., Szatkowski, K. et Zbik, M. (1984). Lacunes et condensations à la limite Jurassique moyen-supérieur dans le Sud de la Pologne : manifestation d'un phénomène mondial ? *C. R. Acad. Sci. Paris*, 299, 1359-1362.

Brunet, M.F. and Le Pichon, X. (1982). Subsidence of the Paris basin, *J. Geophys. Res.*, 87, 8547-8560.

Brunhes, B. (1906). Recherches sur la direction d'aimantation des roches volcaniques. *J. Physique*, 5, 705-724.

Bullard, E.C., Freedman, C., Gellman, H. and Nixon, J. (1950). The westward drift of the Earth's magnetic field. *Phil. Trans. Roy. Soc. London*, 243A, 67-92.

Butler, R.F. (1992). Paleomagnetism: magnetic domains to geologic terranes. Blackwell Scientific Publications, 319 pp.

C

Cariou, E., Enay, R., Atrops, F., Hantzpergue, P., Marchand, D. et Rioult, M. (1997). Oxfordien. In : Biostratigraphie du Jurassique Ouest-européen et méditerranéen : zonations parallèles et distribution des invertébrés et microfossiles. *Bull. Centre Rech. Elf, Exploration et Production (Mémoires)* 17, 79-96.

- Cariou, E., Contini, D., Dommergues, J.L., Enay, R., Geysant, J., Mangold, C. et Thierry, J. (1985). Biogéographie des ammonites et évolution structurale de la Téthys au cours du Jurassique. *Bull. Soc. géol. France*, 8, 679-697.
- Carpentier, C. (2004). Géométries et environnements de dépôt de l'Oxfordien de Lorraine. Thèse Université Nancy 1.
- Cassie, A.B.D. and Baxter, S. (1944). Wettability of porous surfaces. *Trans. Faraday Soc.*, 40, 546-551.
- Cavelier, C. et collaborateurs (1980). Bassin de Paris, in : Géologie des pays européens. France, Belgique, Luxembourg. Dunod.
- Cebers, A.O. (1987b). MHD-instability of a magnetic fluid drop in a cylindrical capillary. *Magnitnaya Gidrodinamika*, 23, 59-62.
- Cecca, F., Martin Garin, B., Marchand, D., Lathuilière, B. and Bartolini, A. (2005). Palaeoclimatic control of biogeographic and sedimentary events in Tethyan and Peri-Tethyan areas during the Oxfordian (Late Jurassic). *Paleogeogr. Paleoclimatol. Paleoecol.*, 222, 10-32.
- Channell, J.E.T. and McCabe, C. (1994). Comparison of magnetic hysteresis parameters of unremagnetized and remagnetized limestones. *J. Geophys. Res.*, 99, 4613-4623.
- Chatzis, I. and Dullien, F.A.L. (1981). Mercury porosimetry curves of sandstones. Mechanisms of mercury penetration and withdrawal. *Powder Technology*, 29, 117-125.
- Chen, F.H., Bloemendal, J. Wang, J.M., Li, J.J. and Oldfield, F. (1997). High-Resolution multi-proxy climate records from chinese loess: evidence for rapid climatic changes over the last 75 kyr. *Paleogeogr. Paleoclimatol. Paleoecol.*, 130, 323-335.
- Cisowski, S. (1981). Interacting vs. non-interacting single-domain behavior in natural and synthetic samples. *Physics Earth Planet. Int.*, 26, 77-83.
- Clément, B.M., Kent, D.V. and Opdyke, N.D. (1996). A synthesis of magnetostratigraphic results from Plio-Pleistocene sediments cored using the hydraulic piston corer. *Paleoceanography*, 11, 299-308.
- Collin, P.Y. and Courville, P. (soumis). Sedimentation and paleogeography of the eastern part of the Paris Basin (France) at the middle-Late Jurassic boundary. *C. R. Acad. Paris*.
- Collin, P.Y., Courville, P., Loreau, J.-P., Marchand, D. et Thierry, J. (1999). Séries condensées et indice de préservation d'unités biostratigraphiques : exemple de l'enneigement de la plate-forme bourguignonne (France) au Callovo-Oxfordien. *C. R. Acad. Sci. Paris*, 328, 105-111.
- Collinson, D.W. (1983). *Methods in rock magnetism and palaeomagnetism: techniques and instrumentation*. Vol. 11, Chapman and Hall, New York, 503 pp.
- Constable, C.G. and Tauxe, L. (1990). The bootstrap for magnetic susceptibility tensors. *J. Geophys. Res.*, 95, 8383-8395.
- Cox, A. (1982). Magnetostratigraphic time scale. In: *A Geologic Time Scale*, ed. W.B. Harland et al., Cambridge University Press, Cambridge, England, 63-84.

Creer, P.C. and Pal, P.C., (1986). Geomagnetic reversals spurts and episodes of extraterrestrial catastrophism. *Nature*, 320, 148-150.

Crooker, N.U., Feynman, J. and Gosling, J.T. (1977). On the high correlation between long-term averages of solar wind speed and geomagnetic activity. *J. Geophys. Res.*, 82, 1933.

Cuilhé, L. et Bruneton, A. (2003). Laboratoire souterrain de Meuse/Haute-Marne. Sismique 3D après retraitement 2002. Interprétation des horizons du Dogger carbonaté pour l'optimisation des implantations et trajectoires des forages FRF. Rapport Andra n° C.RP.0BEI.03.001.A.

Curnelle, R. et Dubois, P. (1986). Evolution mésozoïque des grands bassins sédimentaires français : bassins de Paris, d'Aquitaine et du Sud-Est. *Bull. Soc. géol. France*, 8, 529-546.

D

Day, M., Parker, I.B., Bell, J., Fletcher, R., Duffie, J., Sing, K.S.W. and Nicholson, D. (1994). Modelling of mercury intrusion and extrusion. In *Characterization of porous media*. Rouquerol J., Rodriguez-Reinoso F., Sing K.S.W. and Unger K.K. (Eds). *Studies in Surface Science and Catalysis*, 86, 225-234.

Day, R., Fuller, M.D. and Schmidt, V.A. (1977). Interacting single-domain properties of magnetite intergrowth. *J. Geophys. Res.*, 81, 989-994.

David, P. (1904). Sur la stabilité de la direction d'aimantation dans quelques roches volcaniques. *C. R. Acad. Sci. Paris*, 138, 41-42.

Dekkers, M.J. and Schoonen, M.A.A. (1996). Magnetic properties of hydrothermally synthesized greigite (Fe₃S₄). I. Rock magnetic parameters at room temperature. *Geophys. J. Int.*, 126(2), 360-368.

Dekkers, M.J. (1990). Magnetic monitoring of pyrrhotite alteration during thermal demagnetization. *Geophys. Res. Lett.*, 17, 779-782.

Dekkers, M.J. (1989). Magnetic properties of natural pyrrhotite. II. High- and low-temperature behavior of J_rs and TRM as function of grain size. *Phys. Earth Planet. Int.*, 57, 266-283.

Dekkers, M.J. (1988). Magnetic properties of natural pyrrhotite Part I: Behaviour of initial susceptibility and saturation-magnetization-related rock-magnetic parameters in a grain-size dependent framework. *Physics Earth Planet. Int.*, 52, 376-393.

Dekkers, M.J. (1988). Magnetic behavior of natural goethite during thermal demagnetization. *Geophys. Res. Lett.*, 15, 538-541.

De Graciansky, P.C. and Jacquin, T. (2003) Evolution des structures et de la paléogéographie au passage Lias – Dogger dans le Bassin de Paris d'après les données de la subsurface. *Bull. Soc. géol. France*, 174, 3-17.

Delay, J., Trouiller A. et Lavanchy, J.M. (sous presse). Propriétés hydrodynamiques du Callovo-Oxfordien dans l'est du bassin de Paris : comparaison des résultats obtenus selon différentes approches. *C. R. Geosci.*

- Demory, F., Oberhänsli, H., Nowaczyk, N.R., Gottschalk, M., Wirth, R., and Naumann, R. (2005). Detrital input and early diagenesis in sediments from Lake Baikal revealed by rock magnetism. *Glob. Planet. Change*, 46, 145-166.
- Dercourt, J., Zonenshain, L.P., Ricou, L.E., Kazmin, V.G., Le Pichon, X., Knipper, A.L., et al. (1985). Présentation des 9 cartes paléogéographiques au 1/20.000.000 s'étendant de l'Atlantique au Pamir pour la période du Lias à l'Actuel. *Bull. Soc. géol. France*, 8, 637-652.
- Dewhurst, D.N., Brown, K.M., Clennell, M.B. and Westbrook, G.K. (1996). A comparison of the fabric and permeability anisotropy of consolidated and sheared silty clay, *Engineering Geology*, 42, 253-267.
- Diastrata (2003). Laboratoire de recherche de Meuse/Haute-Marne. Etude géométrique des formations du Jurassique intégrant les forages scientifiques profonds Est 312, 322, 331, 342 et 351. Rapport Andra n° C.RP.oDIA.03.001.A.
- Diastrata (2001). Site Meuse/Haute-Marne. Interprétation des données diagaphiques des sondages EST 201, 202, 203, 204 et 205. Rapport Andra n° D.RP.oDIA.01.001.A.
- Diastrata (1995). Etude sédimentologique du Jurassique du Nord de la Haute-Marne et du Sud de la Meuse. Intégration des données de la sismique 94 et des sondages profonds. Rapport Andra n° B.RP.oDIA.95.003.A.
- Dromart, G., Garcia, J.-P., Picard, S., Atrops, F., Lécuyer, C. and Sheppard, S.M.F. (2003a). Ice age at the Middle-Late Jurassic transition ? *Earth Planet. Sci. Lett.*, 213, 205–220.
- Dromart, G., Garcia, J.P., Gaumet, F., Picard, S., Rousseau, M., Atrops, F., Lecuyer, C. and Sheppard, S.M.F. (2003b). Perturbation of the carbon cycle at the Middle/Late Jurassic: geological and geochemical evidence. *Am. J. Sci.*, 303, 667-707.
- Dromart, G., Allemand, P., Garcia, J.P. and Robin, C. (1996). Variation cyclique de la production carbonatée au Jurassique le long d'un transect Bourgogne-Ardèche, Est-France. *Bull. Soc. géol. Fr.*, 167, 423-433.
- Drozdova, V.I., Cebers, A.O. and Shagrova, G.V. (1990). Magnetic instabilities of microdrops in thin capillaries. *Magnitnaya Gidrodinamika*, 26, 55-62.
- Dugué, O. (2003). The Atlantic oceanic influences in the Paris Basin during the Jurassic. *C. R. Geosci.*, 335, 1049-1050.
- Dugué, O. (1991). Comportement d'une bordure de massifs anciens et cortèges de minéraux argileux : l'exemple de la bordure occidentale du bassin anglo-parisien au Callovo-Oxfordien. *Palaeogeogr. Palaeoclimatol. Palaeoecol.*, 81, 323-346.
- Dugué, O. (1990). Transits argileux à l'Ouest du bassin anglo-parisien, au Callovo-Oxfordien discrimination des apports armoricains et externes. *C. R. Acad. Sci. Paris*, 311, 159-165.
- Dullien, F. A. L. (1981). Mercury porosimetry curves of sandstones. Mechanisms of mercury penetration and withdrawal. *Powder Technology*, 29, 117-125.
- Dunlop, D. J. (2002a). Theory and application of the Day plot (Mrs/Ms versus Hcr/Hc). 1. Theoretical curves and tests using titanomagnetite data. *J. Geophys. Res.* 107, 10.1029/2001JB000487.

- Dunlop, D.J., (2002b). Theory and application of the Day plot (Mrs/Ms versus Hcr/Hc). 2. Application to data for rocks, sediments and soils. *J. Geophys. Res.*, 107, 10.1029/2001JB000487.
- Dunlop, D.J. and Özdemir, Ö. (1997). *Rock magnetism: fundamentals and frontiers*. Cambridge Univ. Press, 573 pp.
- Dunlop, D.J. (1995). Magnetism in rocks. *J. Geophys. Res.*, 100, 2161-2174.
- Dunlop, D.J. and Xu, S. (1993). A comparison of methods of granulometry and domain structure determination. *EOS, Transactions Am. Geophys. Union*, 74, Fall meeting supplement, 203.
- Dunlop, D.J. (1987). Temperature dependence of hysteresis in 0.04–0.22 μm magnetites and implications for domain structure. *Physics Earth Planet. Int.*, 46, 100-119.
- Dunlop, D.J. (1979). On the use of Zijderveld vector diagrams in multi-component palaeomagnetic studies. *Phys. Earth Planet. Int.*, 20, 12-24.

E

- Egli, R. (2004). Characterization of individual rock magnetic components by analysis of remanence curves, 1. Unmixing natural sediments. *Studia Geophysica et Geodaetica*, 48, 391-446.
- Egli, R. (2004). Characterization of individual rock magnetic components by analysis of remanence curves, 2. fundamental properties of coercivity distributions. *Phys. Chemistry Earth*, 29, 851-867.
- Egli, R. (2003). Analysis of the field dependence of remanent magnetization curves. *J. Geophys. Res.*, 102, 10.1029/2002JB002023.
- Eick, J.D., Good, R.J. and Neumann, A.W. (1975). Thermodynamics of Contact Angles—II. Rough Solid Surfaces. *J. Colloid Interface Sci.*, 53, 235-248.
- Elie, M. (2000). Thermicité du Callovo-Oxfordien du site de l'Est. Détermination d'un paléo-enfouissement maximum. Etude complémentaire. Rapport Andra n° D.RP.oCRE.00.003.
- Elion, P. (2001). Site Meuse/Haute-Marne. Synthèse chronostratigraphique des dépôts du Callovo-Oxfordien: datations et évolution géodynamique. Rapport Andra n° D.NT.AGEG.01.033.A.
- Ellwood, B.B. (1980). Application of the anisotropy of magnetic susceptibility method as an indicator of bottom-water flow direction. *Mar. Geol.*, 38, 83-90.
- Ellwood, B.B. and Ledbetter, M.T. (1979). Paleocurrent indicators in deep-sea sediment. *Science*, 203, 1335-1337.
- Elsasser, W.M. (1958). The earth as a dynamo. *Sci. Am.*, 198, 44-48.
- Embleton, B.J.J. and Giddings, J.W. (1974). Late Precambrian and Lower Palaeozoic palaeomagnetic results from South Australia and Western Australia. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 22, 355-365.
- Enay, R., Cariou, E., Bellion, Y., Guiraud, R., Mangold, C. and Thierry, J. (1993). Callovian Palaeoenvironments (162-158 Ma). In : *Atlas Tethys, Palaeoenvironmental Maps* (Eds. J. Dercourt, L.-E. Ricou et B. Vrielynck). CCGM CGMW, Paris.

ERM (2003). Contribution à la recherche des paramètres pétrographiques de contrôle du processus de transport dans les argilites du Callovo-Oxfordien. Rapport Andra n° D.RP.oERM. 03.006.

ERM (2001). Construction d'un modèle conceptuel d'organisation de la porosité et de la minéralogie dans les argilites du site de Bure. Rapport final Andra, D RP oERM 01-018/A.

ERM (1995). Rapport Andra n°6 BM RP ERM 95-004. Caractérisation d'échantillons d'argiles du forage MSE101. (Bouchet, A. & Rassinoux, F.).

ERM (1995). Rapport Andra n° 6B H RP ERM 95-001. Caractérisation d'échantillons d'argiles du forage HTM102. (Bouchet, A. & Rassinoux, F.).

Esteban, L., Geraud, Y. and Bouchez, J.L. (under press). Pore network geometry in low permeability argillites from magnetic fabric data and oriented mercury injections. *Geophys. Res. Lett.*

Esteban, L., Bouchez, J.L., Vadebouin, F. and Siqueira, R. (à soumettre). Magnetic mineralogy of the Callovo-Oxfordien argillites from eastern Paris Basin (France): coexistence of iron-sulphides and iron-oxides. *Geophys. J. Int.*

Esteban, L., Geraud, Y. and Bouchez, J.L. (under press). Pore network connectivity anisotropy in Jurassic argillite specimens from eastern Paris Basin (France). *Physics Chem. Earth.*

Esteban, L. and Bouchez, J.L. (2003). Etude de l'anisotropie structurale des argilites kimméridgiennes par des mesures de l'anisotropie de la susceptibilité magnétique. Rapport Andra, D CC AGEM 01-036.

Esteban, L., Bouchez, J.L. and Trouiller, A. (under press). The Callovo-Oxfordian argillites from Eastern Paris Basin: magnetic data and petrofabrics. *C. R. Acad. Sci. Paris, Earth Planet. Sci.*

Esteban, M. and Taberner, C. (2003). Secondary porosity development during late burial in carbonate reservoirs as a result of mixing and/or cooling of brines. *J. Geochem. Explor.*, 78-79, 355-359.

Eurogéomat (1995). Caractéristiques hydrodynamiques de l'argiles du Gard - Haute-Marne - Meuse. Rapport Andra n° B.RP.oEUG.95.004.

Evans, M.E. and Heller, F. (2003). Environmental magnetism: principles and applications of enviromagnetics. Academic Press, vol. 86 in: International geophysics series, 299 pp.

F

Fisher, N.I., Lewis, T. and Embleton, B.J.J. (1987). *Statistical Analysis of Spherical Data*. Cambridge University Press.

Flinn, D. (1962). On folding during three-dimensional progressive deformation. *Geol. Soc. London Quart. J.*, 118, 385-433.

Froelich, P.N., Klinkhammer, G.P., Bender, M.L., Luedtke, N.A., Heath, G.R., Cullen, D., Dauphin, P., Hammond, D., Hartman, B. and Maynard, V. (1979). Early oxidation of organic matter in pelagic sediments of the eastern equatorial Atlantic: suboxic diagenesis. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 43, 1075-1090.

Garcia, J.P., Dromart, G., Guillocheau, F., Allemand, P., Gaumet, F., Robin, C. and Sambet, G. (1996). Bathonian-Callovian Paris Basin-Subalpine Basin intercorrelations along an Ardennes-Ardèche cross section. *C. R. Acad. Sci. Paris*, 323, 697-703.

G

Gaucher, E., Robelin, C., Matray, J.M., Négrel, G., Gros, Y., Heitz, J.F., Vinsot, A., Rebours, H., Cassagnabère, A., Bouchet, A. (2004). Andra underground research laboratory: interpretation of the mineralogical and geochemical data acquired in the Callovo-Oxfordian formation by investigative drilling. *Phys. Chem. Earth*, 29, 55-77.

Gauss, C.F. (1839). *Allgemeine Theorie des Erdmagnetismus*, Leipzig. Reprinted in C.F. Gauss, *Werke*, vol. 5, pp. 121-193. König. Gesellsch. Wissen., Göttingen, 1877.

Gehring, A.U. and Hofmeister, A.M. (1994). The transformation of lepidocrocite during heating: a magnetic and spectroscopic study. *Clays Clay Min.*, 42(4), 409-415.

Géraud, Y. et Gaviglio, P. (2000). Reconstitution du réseau poreux d'un échantillon décomprimé: mise en évidence d'une anisotropie de connectivité. *C. R. Acad. Sci. Paris*, 331, 339-344.

Géraud, Y., Liewig, N. and Raynaud, S. (2003). Location of porous volume used for transport and fluid-rock interaction by using mercury injection data. In: *Hydromechanical and thermohydromechanical behaviour of deep argillaceous rock, Theory and experiment*. Hoteit N., Su K., Tijani M. and Shao J-F (eds). Balkema publ., 123-128.

Gilbert, W. (1600). *De Magnete*. Reprinted by Dover, New-York, 1958.

Golubiatnikov A.N. and Subkhankulov, G.I. (1986). On the surface tension of a magnetic fluid. *Magnitnaya Gidrodinamika*, 22, 73-78.

Gonzalez, S., Sherwood, G., Böhnell, H. and Schnepf, E. (1997). Palaeosecular variation in Central Mexico over the last 30000 years: the record from lavas. *Geophys. J. Int.*, 130, 201-219.

Good, R.J. and Mikhail, R.S.H. (1981). The contact angle mercury intrusion porosimetry. *Powder Technology*, 29, 53-62.

Grataloup, S. (2004). Site Meuse/Haute-Marne, Géothermie, Inventaire des nouvelles données. Note technique Andra n° C.NT.ASMG.04.0001.

Grégoire, A., Carpentier, C., Hibsich, C., Beaudoin, B. et Elion, P. (2003). Filons sédimentaires dans l'Oxfordien de l'est du bassin parisien: contexte sédimentaire, paléotectonique et paléocirculations. 13ème RST, session E6.

Guettard, J.E. (1746). Mémoire et carte minéralogique sur la nature et la situation des terrains qui traversent la France et l'Angleterre. *Mém. Acad. Roy. Sci.*, 363-393.

Guettard, J.E. (1756). Description minéralogique des environs de Paris, *Mém. Acad. Roy. Sci.*, 217-258.

Guillocheau, F., Robin, C., Allemand, P., Bourquin, S., Brault, N., Dromart, G., Friedenber, R., Garcia, J.-P., Gaulier, J.-M., Gaumet, F., Grosdoy, B., Hanot, F., Le Strat, P., Mettraux, M., Nalpas, T., Prijac, C., Rigollet, C., Serrano, O. and Grandjean, G. (2000). Meso-Cenozoic geodynamic evolution of the Paris Basin: 3D stratigraphic constraints. *Geodinamica Acta*, 13, 189-246.

Guillocheau, F., Robin, C., Allemand, P., Bourquin, S. et Brault, N. (1999). Evolution géodynamique du bassin de Paris : Apport d'une base de données stratigraphiques 3D. *Bull. Inf. Bass. Paris*, 36, 4, 3-35.

Guinasso, N.L. and Schink, D.R. (1975). Quantitative estimates of biological mixing rates in abyssal sediments. *J. Geophys. Res.*, 80, 3032-3043.

Gygi, R.A. et Persoz, F. (1987). The epicontinental sea of Swabia (southern Germany) in the Late Jurassic—factors controlling sedimentation. *Neues Jahrbuch für Geologie und Palaeontologie. Abhandlungen*, 176, 49-65.

H

Hagerty, S.E. (1976). Oxidation of opaque mineral oxides in basalts, and opaque mineral oxides in terrestrial igneous rocks. In *Oxide Minerals*, D. Rumble (Ed.), Mineral Society of America, Washington, DC.

Hallam, A. (2001). A review of the broad pattern of Jurassic sea-level changes and their possible causes in the light of current knowledge. *Palaeogeogr. Palaeoclimatol. Palaeoecol.*, 167, 23-37.

Hautevelle, Y., Michels, R., Malartre, F. and Trouiller, A. (under press). Vascular plant biomarkers as proxies of paleoflora and paleoclimatic changes at the Dogger/Malm transition of Paris Basin (France). *Org. Geochem.*

Hautevelle, Y. (2005). Géochimie organique des séries argilo-carbonatées du Callovo- Oxfordien de l'Est du bassin de Paris et d'Angleterre. Variabilités et implications paléoenvironnementales. Université Henri Poincaré, Nancy, 382 pp.

Hawthorne, T.B. and McKenzie, J.A. (1993). Biogenic magnetite: authigenesis and diagenesis with changing redox conditions in lake Greifen, Switzerland. In: *Applications of Paleomagnetism to sedimentary geology*. D.M. Aïssaoui, D.F. McNeill and N.F. Hurley, eds. SEPM, Society for Sedimentary Geology, special publication, 49, 3-15.

Hedley, I.G. (1968). Chemical remanent magnetization of the FeOOH, Fe₂O₃ system. *Physics Earth Planet. Int.*, 1, 103-121.

Heling, D. (1970). Micro-fabrics of shales and their rearrangement by compaction. *Sedimentology*, 15, 247-260.

Heitz J.F. (1997) Expertise relative à l'ovalisation de forages de la zone d'étude de l'Est de la France. Rapport technique (Antéa) n° B.RP.0ANT.96.128.

Henshaw, P.C. and Merrill, R.T. (1980). Magnetic and chemical change in marine sediments. *Rev. Geophys. Space Physics*, 18, 483-504.

Herbert, T.D. (1993). Differential compaction in lithified deep-sea sediments is not evidence for "diagenetic unmixing". *Sedimentary Geology*, 84, 115-122.

Heslop, D., Dekkers, M.J., Kruiver, P.P. and van Oorschot, I.H.M. (2002). Analysis of isothermal remanent magnetization acquisition curves using the expectation-maximization algorithm. *Geophys. J. Int.*, 148, 58-64.

Hext, G. R. (1963). The estimation of second-order tensors, with related tests and designs, *Biometrika*, 50, 353-357.

Hildenbrand, A. and Urai, J.L. (2003). Investigation of the morphology of pore space in mudstones-first results. *Mar. Petrol. Geol.*, 20, 1185-1200.

Hirt, A.M., Lanci, L., Dobson, J., Weidler, P. and Gehring, A.U. (2002). Low-temperature magnetic properties of lepidocrocite. *J. Geophys. Res.*, 107, 1-9.

Hornig, C.S., Chen, J.C. and Lee, T.Q. (1992). Variations in magnetic minerals from two Plio-Pleistocene marine-deposited sections, southwestern Taiwan. *J. Geol. Soc. China*, 35, 323-335.

Housen, B.A., Richter, C. and Van der Pluijm, B.A. (1993). Composite magnetic anisotropy fabrics: experiments, numerical models and implications for the quantification of rock fabrics. *Tectonophysics*, 220, 1-12.

Hrouda, F. (1982). Magnetic anisotropy of rocks and its application in geology and geophysics. *Geophys. Surv.* 5, 37-82.

Hu, S., Appel, E., Hoffman, V., Schmahl, W. and Wang, S. (1998). Gyroremanent remanence acquired by greigite (Fe₃S₄) during static three-axis alternating field demagnetisation. *Geophys. J. Int.* 134, 831-842.

Huault, V., Elie, M. et Ruck-Mosser, R. (2003). Variabilité spatiale du signal palynologique dans le bassin de Paris à la limite Dogger-Malm. *C. R. Geosci.*, 335, 401-409.

Hunt, C.P., Moskowitz, B.M. and Banerjee, S.K. (1995). Magnetic properties of rocks and minerals. AGU reference shelf 3, Rock physics and phase relations, *Handbook of Physical Constants*, 189-204.

Huret, E., Galbrun, B., Collin, P.Y., Ravenne, C. and Elio, P. (2005). Interprétation cyclostratigraphique des variations de la SM des séries marneuses du Callovo-Oxfordien de l'Est du Bassin de Paris (site Andra, Meuse/Haute-Marne): Application à la recherche de hiatus sédimentaires. 10ème congrès français de Sédimentologie, livre des résumés, Publ. ASF, Paris, n° 39, 260-261.

Hyodo, M. (1983). Possibility of reconstruction of the past geomagnetic field intensity from homogeneous sediments. *Rock Mag. Paleogeophys.*, 10, 42-49.



Ising, G. (1943). On the magnetic properties of varved clay. *Arkiv Mat. Astron. och Fysik*, 29, 1-37.

J

Jackson, M.J., Rochette, P., Fillion, G., Banerjee, S.K. and Marvin, J.A. (1993). Rock magnetism of remagnetized Paleozoic carbonates: low-temperature behavior and susceptibility characteristics. *J. Geophys. Res.*, 98, 6217-6225.

Jackson, M.J., Banerjee, S.K., Marvin, J.A., Lu, R. and Gruber, W. (1991). Detrital remanence, inclination errors, and anhysteretic remanence anisotropy: quantitative model and experimental results. *Geophys. J. Int.*, 104, 95-103.

Jackson, M.J., Gruber, W., Marvin, J. A. and Banerjee, S. K (1988). Partial anhysteretic remanence and its anisotropy: applications and grainsize dependence. *Geophys. Res. Lett.*, 15, 440-443.

Jacquín, T., Dardeau, G., Durllet, C., De Graciansky, P.C. and Hantzpergue, P. (1998). The North Sea cycle: an overview of 2nd order transgressive/regressive facies cycles in Western Europe. In: De Graciansky, P.-C. et al. (Eds.), *Mesozoic and Cenozoic Sequence Stratigraphy of European Basins*. SEPM Spec. Publ. 60, 445-466.

Jaep, W.F. (1969). Anhysteretic magnetization of an assembly of single-domain particles. *J. Appl. Phys.*, 40, 1297-1298.

Jelinek, V. (1978). Statistical processing of anisotropy of magnetic susceptibility measured on groups of specimens. *Studia Geophys. et geol.* 22, 50-62.

Jelinek, V. (1977). The statistical theory of measuring anisotropy of magnetic susceptibility of rocks and its application, *Geofysika Brno, Czech Republic*, 88 pp.

Jenkyns, H.C. (1978). Pelagic environments. In: *Sedimentary Environments and Facies* (Ed. H.C. Reading). Blackwell, Oxford, 314-371.

Jiang, W.T., Horng, C.S., Roberts, A.P. and Peacor, D.R. (2001). Contradictory magnetic polarities in sediments and variable timing of neof ormation of authigenic greigite. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 193, 1-12.

Johnson, A., Roy, I.M., Matthews, G.P., and Patel D. (2003). An improved simulation of void structure, water retention and hydraulic conductivity in soil, using the Pore-Cor three-dimensional network. *European Journal of Soil Science*, 54, 477-489.

Johnson, R.E. and Dettre, E. (1969). Wettability and contact angles. *Surface and Colloid Science*, Matijevic, E. (Ed.), Wiley, Nueva York, EEUU.

K

Kakol, Z., Sabol, J. and Honig, J. M. (1991). Cation distribution and magnetic properties of titanomagnetites $Fe_{3-x}Ti_xO_4$ ($0 \leq x < 1$). *Physic. Rev. Condensed Matter*, 43, 649-654.

Katsube, T.J., Percival, J.B. and Hume, J.P. (1985). Characterization of a rock mass by pore structure parameters. 17^o Réunion sur le programme des déchets de combustibles nucléaires. Pinawa, Canada, 2, 375-413.

- Katz, B., Elmore, R.D., Cogoini, M., Engel, M.H. and Ferry, S. (1999). Associations between burial diagenesis of smectite, chemical remagnetization, and magnetite authigenesis in the Vocontian trough, SE France. *J. Geophys. Res.*, 105, 851-68.
- Katz, A.J. and Thompson, A.H. (1986). A quantitative prediction of permeability in porous rock. *Phys. Rev.*, B/24, 8179-8181.
- Katz, A.J. and Thompson, A.H. (1987). Prediction of rock electrical conductivity from mercury injection measurements. *J. Geophys. Res.*, 92/B1, 599-607.
- Kemball, C. and Rideal, E.K. (1946). The Adsorption of Vapors on Mercury. I. Non-Polar. Compounds. *Proc. R. Soc. (London)*, A187, 53-73.
- Kemball, C. (1947). The Adsorption of Vapours on Mercury. III. Polar substances. *Proc. R. Soc. (London)*, 190, 117-137.
- Kent, J.T. (1982). The Fisher-Bingham distribution on the sphere. *J. R. Statist. Soc. B.*, 44, 71-80.
- Kloubek, J. (1994). Investigation of Porous Structures Using Mercury Reintrusion and Retention. *J. Colloid Interface Sci.*, 163, 10-18.
- King, J., Banerjee, S.K., Marvin, J. and Ozdemir, O. (1982). A comparison of different magnetic methods of determining the relative grain size of magnetite in natural materials: some results from lake sediments. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 59, 404-419.
- Kirshvink, J.L. (1980). The least squares line and plane and the analysis of paleomagnetic data. *Geophys. J.R. Astron. Soc.*, 62, 699-718.
- Kissel, C., Laj, C., Lehman, B., Laberie, L. and Bout-Roumzeilles, V. (1997). Changes in the strength of the Iceland-Scotland Overflow Water in the last 200,000 years: evidence from magnetic anisotropy analysis of core SU90-33. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 152, 25-36.
- Klute, A. and Dirksen, C. (1986). Hydraulic conductivity and diffusivity: laboratory methods. In *Methods of Soil Analysis: Part I, SSSA*, 687-734.
- Koenigsberger, J.G. (1938). Natural residual magnetism of eruptive rocks. *Terr. Magn. Atmos. Elec.*, 43, 299-320.
- Kontny, A. and de Wall, H. (2000). Case studies on the use of temperature-dependent susceptibility for the characterisation of magneto-mineralogical changes during metamorphism. *Phys. Chem. Earth*, 25, 421-429.
- Koriche, M. (2004). Caractérisation du comportement couplé des argilites de Meuse/Haute-Marne aux états saturés et partiellement saturés. Thèse Université Nancy.
- Kruiver, P.P., Dekkers, M.J. and Heslop, D. (2001). Quantification of magnetic coercivity components by the analysis of acquisition curves of isothermal remanent magnetization. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 189, 269-276.
- Kuzhir, P. (2003). Ecoulement des fluides magnétiques dans les capillaires et milieux poreux sous l'effet d'un champ magnétique. Thèse de doctorat, Univ. Nice-Sophia Antipolis, 185 pp.

L

- Lacombe, O., Angelier, J., Bergerat, F. et Laurent, P. (1990) Tectoniques superposées et perturbations de contrainte dans la zone transformante Rhin – Saône : apport de l'analyse des failles et des macles de la calcite. *Bull. Soc. géol. France*, (8) VI, 5, 853-863.
- Laego (2005). Laboratoire de recherche souterrain de Meuse/Haute-Marne. Essais de perméabilité. Ouvrage EST207. Rapport Andra n° C.RP.oENG.04.0300.A.
- Laego (2003). Essais sur échantillons pour le développement des modèles rhéologiques HM et THM des argilites. Rapport Andra n° C.RP.oENG.02.0530.
- Landais, P. and Elie, M. (1999). Utilisation de la géochimie organique pour la détermination du paléoenvironnement et de la paléothermicité dans le Callovo-Oxfordien du site de l'Est de la France. Actes des Journées Scientifiques CNRS/ANDRA, EDP Sciences Ed., Paris.
- Landau L.D. and Lifschitz, E.M. (1982). *Theoretical physics: electrodynamics of continuous media*. 2nd edition, Moscow, Nauka, 8, 624 pp.
- Langevin, P. (1905). *La théorie cinétique du magnétisme et les magnétrons*. Paris, Gauthier-Villars.
- Lavanchy, J.M. and Distinguin, M. (2005). Determination of hydraulic properties of the Callovo-Oxfordian argillite at the Bure site: synthesis of the results obtained in deep boreholes using several in-situ investigation techniques. In: *Clays in natural & engineered barriers*. 2nd Int. Andra Meeting, Tours, France.
- Lean, C.M.B. and McCave, I.N. (1995). Glacial to interglacial mineral magnetism and palaeoceanographic changes at Chatham Rise, SW Pacific Ocean. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 163, 247-260.
- Lemoine, M. et de Gracianski, P.C. (1988). Marge continentale thétysienne dans les Alpes. *Bull. Soc. géol. France*, 8, IV/4, 598-697.
- Lenormand, R. and Zarcone, C. (1988). Physics of blob displacement in a two-dimensional porous medium. *SPE Form. Eval.*, 3, 271-275.
- Leroueil, S., Bouclin, G., Tavenas, F., Bergeron, L. and Rochelle, P. (1990). Permeability anisotropy of natural clays as a function of strain. *Can. Geotech. J.*, 27, 568-579.
- Leslie, B.W., Hammond, D.E., Berelson, W.M. and Lund, S.P. (1990). Diagenesis in anoxic sediments from the California continental borderland and its influence on iron, sulfur and magnetite behavior. *J. Geophys. Res.*, 95, 4453-4470.
- Lindsay, D.H., Andreasen, G.E. and Balsley, J.R. (1966). Magnetic properties of rocks and minerals. In *Handbook of physical constants*, memoir 97, Ed. S.P. Clark, Geological Society of America, New York, 543-552.
- Lock, P.A., Xudong, J. and Zimmerman, R.W. (2004). Comparison of methods for upscaling permeability from the pore scale to the core scale. *J. Hydr. Res.*, 42, 3-8.

Lowell, S. and Shields; J.E. (1981). Influence of contact angle on hysteresis in mercury porosimetry. *J. Colloid Interface Sci.*, 83, 273-278.

Lowrie, W. (1990). Identification of ferromagnetic minerals in a rock by coercivity and unblocking temperature properties. *Geophys. Res. Lett.*, 17/2, 159-162.

M

Maher, B.A. (1988). Magnetic properties of some synthetic submicron magnetites. *Geophys. J.*, 94, 83-96.

Matthews, G.P., Canonville, C.F. and Moss, A.K. (2006). Use of a void network model to correlate porosity, mercury porosimetry, thin section, absolute permeability and NMR relaxation time data for sandstone rocks. *Phys. Review E*, 73, 9.

Matthews, G.P., Moss, A.K., Spearing, M.C. and Volland, F. (1993). Network calculation of mercury intrusion and absolute permeability in sandstone and other porous media. *Powder Technology*, 76, 95-107.

Matthews, G.P., Ridgway, C.J. and Spearing, M.C. (1995). Void space modeling of mercury intrusion hysteresis in sandstone, paper coating, and other porous media. *J. Colloid Interface Sci.*, 171, 8-27.

Matuyama, M. (1929). On the direction of magnetisation of basalt in Japan, Tyosen and Manchuria. *Proc. Imper. Acad. Japan*, 5, 203-205.

McElhinny, M.W. and McFadden, P.L. (2000). *Paleomagnetism: continents and oceans*. Academic Press, Int. Geophys. Series, vol. 73, California, 386 pp.

McElhinny, M.W. and Senanayake, W.E. (1982). Variations in the geomagnetic dipole: the past 50 000 years. *J. Geomag. Geoelect.*, 34, 39-51.

McEnroe, S.A., Harrison, R., Robinson, P. and Golla, U. (2001). The effect of fine-scale microstructures in titanohematite on the acquisition and stability of NRM in granulite facies metamorphic rocks from southwest Sweden: Implications for crustal magnetism. *J. Geophys. Res.*, 106, 30523-30546.

McFadden, P.L. (1987). Comment on "Aperiodicity of magnetic reversals?". *Nature*, 330, 27.

Meng, B. and Sveinsdottir, E.L. (1997). Application of the resolution-dependent characterization of pore structure by means of image analysis on thin sections. *Proceedings of the sixth euroseminar on microscopy applied to building materials, Reykjavik*, 370-379.

Meng, B. (1994). Pore structure and moisture transport in sandstones: determination of relevant microstructural properties. In: *Characterization of porous solid III*. Roquerol J., Rodriguez-Reinoso F., Sing K.S.W. et Unger K.K. (Eds). Elsevier publ., *Studies Surface Science Catalysis*, 87, 771-780.

Merril, R.T. and McElhinny, M.W. (1983). *The Earth's magnetic field: its history. Origin and planetary perspective*. Academic Press, London, 401 pp.

- Merril, R.T. and McFadden, P.L. (1988). Secular variation and the origin of geomagnetic field reversals. *J. Geophys. Res.*, 93, 11589-11597.
- Merril, R.T., McElhinny, M.W. and McFadden, P.L. (1996). *The magnetic field of the Earth: paleomagnetism, the core, and the deep mantle*. Academic Press, San Diego, 531 pp.
- Modry, S., Svata, M. and Brakel (Van), J. (1981). Thematic bibliography of mercury porosimetry. *Powder Technology*, 29, 13-43.
- Moon, T.S. (1991). Domain states in fine particle magnetite and titanomagnetite. *J. Geophys. Res.*, 96, 9909-9923.
- Morris, R.V., Golden, D.C., Shelfer, T.D. and Lauer, H.V. (1998). Lepidocrocite to maghemite to hematite: a pathway to magnetic and hematitic Martian soil. *Meteor. Planet. Sci.*, 33, 743-51.
- Moskowitz, B.M., Frankel, R.B., Bazylinski, D.A., Jannasch, H.W. and Lovley, D.R. (1989). A comparison of magnetite particles produced anaerobically by magnetotactic and dissimilatory iron-reducing bacteria. *Geophys. Res. Lett.*, 16, 668-668.
- Moskowitz, B.M., Frankel, R.B. and Bazylinski, D.A. (1993). Rock magnetic criteria for the detection of biogenic magnetite. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 120, 283-300.
- Moskowitz, B.M., Jackson, M. and Kissel, C. (1998). Low-temperature magnetic behaviour of titanomagnetites. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 157, 141-149.
- Muller, R.A. and Morris, D.E. (1986). Geomagnetic reversals from impacts on the Earth. *Geophys. Res. Lett.*, 13, 1177-1180.
- Muxworthy, A.R. (1999). Low-temperature susceptibility and hysteresis of magnetite. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 169, 51-58.
- Muxworthy, A.R. and McClelland, E. (2000). Review of the low-temperature magnetic properties of magnetite from a rock magnetic perspective. *Geophys. J. Int.*, 140, 101-114.

N

- Néel, L. (1949). Influence des fluctuations thermiques sur l'aimantation de grains ferromagnétiques très fins. *C. R. Acad. Sci. Paris*, 228, 664-666.
- Neretin, L.N., Bottcher, M.E., Jorgensen, B.B., Volkov, I.I., Luschen, H. and Hilgenfeldt, K. (2004). Pyritization processes and greigite formation in the advancing sulfidization front in the Upper Pleistocene sediments of the Black Sea. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 68, 9, 2081-2093.
- Neuzil, C. E. (1974). How permeable are clays and shales? *Water Resour. Res.*, 30, 145-150.
- Newell, A.J. and Merrill, R.T. (1999). Single-domain critical sizes for coercivity and remanence. *J. Geophys. Res.*, 104, 617-628.
- Norris, M.S. and Hallam, A. (1995). Facies variations across the Middle-Upper Jurassic boundary in Western Europe and the relationship to sea-level changes. *Paleogeogr. Paleoclimatol. Paleoecol.*, 116, 189-245.

Northon, D. and Knapp, R. (1977). Transport phenomena in hydrothermal systems: the nature of porosity. *Am. J. Sc.*, 277, 913-936.

Northon, D. and Knight, J. (1977). Transport phenomena in hydrothermal systems: cooling plutons. *Am. J. Sc.*, 277, 937-981.

O

Oldenburg, C.M., Borglin, S.E. and Mordis, G.J. (2000). Numerical simulation of ferrofluid flow for subsurface environmental engineering applications. *Transp. Porous Med.*, 38, 319-344.

Oldfield, F. (1994). Toward the discrimination of fine grained ferrimagnets by magnetic measurements in lake and near-shore marine sediments. *J. Geophys. Res.*, 99, 9045-9050.

O'Reilly, W. and Banerjee, S.K. (1965). Cation distribution in titanomagnetites $(1-x) \text{Fe}_3\text{O}_4-x \text{Fe}_2\text{TiO}_4$. *Physics Lett.*, 17, 237-238.

O'Reilly, W. (1984). *Rock and Mineral Magnetism*. Blackie, Chapman and Hall, New York, 220 pp.

Orr, C. and Dalla Valle, J.M. (1959). *Fine particle measurement-size, surface, and pore volume*. Macmillan, New York. 2.A.

Owen, H.G. (1983). *Atlas of continental displacement: 200 millions years to the present*. Cambridge Univ. Press, 555 pp.

P

Palfy, J., Smith, P.L. and Mortensen, J.K. (2000). A U-Pb and $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ time scale for the Jurassic. *Canad. J. Earth Sci.*, 37, 923-944.

Parker, E.N. (1955). Hydromagnetic dynamo models. *Astrophys. J.*, 122, 293-314.

Parry, L. G. (1982). Magnetization of immobilized particle dispersions with two distinct particle sizes. *Physics Earth Planet. Int.*, 28, 230-241.

Passier, H.F., Dekkers, M.J. and de Lange, G.J. (1998). Sediment chemistry and magnetic properties in an anomalously reducing core from the eastern Mediterranean Sea. *Chem. Geol.*, 152, 3-4, 287-306.

Paularena, K.I., Szabo, A. and Richardson, J.D. (1995). Coincident 1.3-year periodicities in the geomagnetic index and the solar wind. *Geophys. Res. Lett.*, 22, 3001.

Pellenard, P. (2003). *Messages terrigènes et influences volcaniques au Callovo-Oxfordien dans les bassins de Paris et du Sud-Est de la France*. PhD thesis, Lille University, Soc. géol. du Nord, n°31, 361 pp.

Pellenard, P., Deconinck, J.F., Marchand, D., Thierry, J., Fortwengler, D. et Vigneron, G. (1999). Contrôle géodynamique de la sédimentation argileuse du Callovo-Oxfordien moyen dans l'Est du Bassin de Paris: influence eustatique et volcanique. *C. R. Acad. Sci. Paris, Ser. IIA*, 328, 807-813.

Pellerin, F.M. (1980). La porosité au mercure appliquée à l'étude géotechnique des sols et des roches. Bull. Liaison Lab. Ponts et Chaussées, 106, 105-116.

Peregrinus, P. (1269). Epistola de Magnete. In Smith, P.J. (1970). Petrus Peregrinus Epistola-The beginning of experimental studies of magnetism in Europe. Atlas News Suppl., Earth Sci. Rev., 6, AII.

Peters, C. and Thompson, R. (1998). Magnetic identification of selected natural iron oxides and sulphides. J. Magn. Mag. Mat., 183, 365-74.

Petersen, N., Dobeneck, T.V. and Vali. H. (1986). Fossil bacterial magnetite in deep-sea sediments from the South Atlantic Ocean. Nature, 320, 611-615.

Pfleiderer, S. and Halls, H.C. (1994). Magnetic pore fabric analysis: a rapid method for estimating permeability anisotropy. Geophys. J. Int., 116, 39-45.

Pick, T. and Tauxe, L. (1991). Chemical remanent magnetization in synthetic Fe₃O₄. J. Geophys. Res., 96, 9925-9936.

Pickell, J.J., Swanson, B.F. and Hickman, W.B. (1966). Application of air-mercury and oil-air capillary pressure data in the study of pore structure and fluid distribution. SPE, 1, 55-61.

Pozzi, J.P. (1973). Effet de pression en magnétisme des roches. Thèse, Paris, 190 pp.

Pradhan V.H. and Verma, A.P. (1998). Finite element treatment of imbibition phenomenon involving magnetic fluid. Indian J. Eng. Mater. Sci., 5, 465-468.

Prévoit, M. and Perrin, M. (1992). Intensity of the Earth's magnetic field since Precambrian time from Thellier-type paleointensity data and inferences on the thermal history of the core. Geophys. J. Int., 108, 613-620.

Price, G.D. (1999). The evidence and implications of polar ice during the Mesozoic. Earth Sci. Rev., 48, 183-210.

Pullaiah, G.E., Irving, E., Buchan, K.L. and Dunlop, D.J. (1975). Magnetization changes caused by burial and uplift. Earth Planet. Sci. Lett., 28, 133-143.

R

Radakrishnamurty, C. and Likhite, S.D. (1993). Frequency dependence of low-temperature susceptibility peak in some titanomagnetites. Phys. Earth Planet. Inter., 76, 131-136.

Rais P., Louis B., Bernasconi S. and Weissert H. (2005). Evidence for changes in intermediate-water currents in the Alpine Tethys during the Late Jurassic. General Assembly 2005 of the European Geosciences Union, Geophysical Research Abstracts, volume 7, Vienna, Autriche, 24-29 avril, 2005, 06583.

Raup, D.M. and Sepkoski, J.J. (1984). Periodicity of extinctions in the geologic past. Proceed. Nat. Acad. Sci. U.S.A., 81, 801-805.

Ravenne, C. et Trouiller, A. (2005). Projet Hiatus. Bilan des études 2004. Partenariat Andra-IFP. Rapport Andra n° C.RP.P.SMG 05 0001.

- Revil, A. and Glover, P.W.J. (1998). Nature of surface electrical conductivity in natural sands, sandstones and clays. *Geophys. Res. Lett.*, 25, 691-694
- Richter, C., Hayashida, A., Guyodo, Y., Valet, J.P. and Verosub, K.L. (1999). Magnetic intensity loss and core diagenesis in long-core samples from the East Basin and the San Nicolas Basin (California Borderland). *Earth Planets Space*, 51, 329-336.
- Ricou, L.E. (1994). Tethys reconstructed : plates, continental fragments and their boundaries since 260 Ma from Central America to South-eastern Asia. *Geodinamica Acta*, 7, 169-218.
- Rimbert, F. (1959). Magnetic reversals and mass extinctions. *Nature*, 314, 341-343.
- Rioult, M., Dugué O., Jan du Chêne R., Ponsot C., Fily G., Moron J.M. and Vail P.R. (1991). Outcrop sequence stratigraphy of the Anglo-Paris basin, Middle to Upper Jurassic (Normandy, Maine, Dorset). *Bull. Centre Rech. Elf, Exploration-Production d'Elf Aquitaine*, 15, 101-194.
- Roberts, A.P. and Weaver, R. (2005). Multiple mechanisms of remagnetization involving sedimentary greigite (Fe_3S_4). *Earth Planet. Sci. Lett.*, 231(3-4), 263-277.
- Roberts, A.P., Reynolds, R.L., Verosub, K.L. and Adam, D.P. (1996). Environmental magnetic implications of greigite (Fe_3S_4) formation in a 3 m.y. lake sediment record from Butte Valley, northern California. *Geophys. Res. Lett.*, 23, 2859-2862.
- Roberts, A.P. (1995). Magnetic properties of sedimentary greigite (Fe_3S_4). *Earth Planet. Sci. Lett.*, 134, 227-236.
- Roberts, A.P. and Turner, G.M. (1993). Diagenetic formation of ferrimagnetic iron sulphide minerals in rapidly deposited marine sediments: South Island, New Zealand. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 115, 257-273.
- Robertson, D. J. and France, D. E. (1994). Discrimination of remanence-carrying minerals in mixtures, using isothermal remanent magnetization acquisition curves. *Phys. Earth Planet. Int.*, 82, 223-234.
- Robin, C. (2003). Site de Meuse/Haute-Marne. Modèle géométrique 3D du bassin de Paris. Rapport Andra n° C.RP.oGES.003.001.
- Robin, C., Guillocheau, F., Allemand, P., Bourquin, S., Dromart, G., Gaulier, J.M. et Prijac, C. (2000). Echelles de temps et d'espace du contrôle tectonique d'un bassin flexural intracratonique : le bassin de Paris. *Bull. Soc. géol. Fr.*, 171, 181-196.
- Robinet, J.C. et Rhattas, M. (1995). Détermination de la perméabilité non saturée des matériaux argileux à faible porosité. *Can. Geotech J.*, 32, 6, 1035-1043
- Rochette, P., Fillion, G., Mattéi, J.L. and Dekkers, M.J. (1990). Magnetic transition at 30-34 Kelvin in pyrrhotite: insight into a widespread occurrence of this mineral in rocks. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 98, 319-328.
- Rochette, P., Jackson, M.J. and Aubourg, C. (1992). Rock magnetism and the interpretation of anisotropy of magnetic susceptibility. *Rev. Geophys.*, 30, 209-226.
- Rootare, J.P. and Prenzlou, C.F. (1967). Surface areas from mercury porosimeter measurements. *J. Phys. Chem.*, 71, 2733-2736.

Rosensweig, R. (1985). *Ferrohydrodynamics*. Cambridge University Press, Cambridge, 360 pp.

Rousset, D. (2002). *Etude de la fraction argileuse de séquences sédimentaires de la Meuse et du Gard. Reconstitution de l'histoire diagénétique et des caractéristiques physico-chimiques des cibles*. Thèse Université Louis Pasteur, Strasbourg.

Russell, C.T. and McPherron, R.L. (1973). Semi-annual variation of geomagnetic activity. *J. Geophys. Res.*, 78, 92.

S

Sagnotti, L. and Winkler, A. (1999). Rock magnetism and paleomagnetism of greigite-bearing mudstones in the Italian peninsula. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 165, 67-80.

Sammartino, S., Siitari-kauppi, M., Meunier, A., Sardini, P., Bouchet, A. and Tevissen, E. (2002). An imaging method for the porosity of sedimentary rocks: Adjustment of the PMMA method. Example of a characterization of a calcareous shale, *J. Sediment. Res.*, 72, 937-943.

Sammartino, S. (2001). *Construction d'un modèle conceptuel de la porosité et de la minéralogie dans les argilites du site de Bure*. Rapport Andra n° D.RP.0ERM.01.018.

Scheidegger, A.E. (1963). *Principles of geodynamics*. Second edition. Berlin (Ed.), Springer-Verlag, 362 pp.

Schwehr, K. and Tauxe, L. (2003). Characterization of soft-sediment deformation: detection of cryptoslumps using magnetic methods. *Geol. Soc. Am. Bull.*, 31, 203-206.

Shapiro, R. (1967). Interpretation of the subsidiary peaks at periods near 27 days in power spectra of geomagnetic disturbance indices. *J. Geophys. Res.*, 72, 4945.

Shaw, J. (1974). A new method of determining the magnitude of the paleomagnetic field: application to five historic lavas and five archaeological samples. *Geophys. J.R. Astr. Soc.*, 39, 133-141.

Shoonen, M.A.A. and Barnes, H.L. (1991). Reactions forming pyrite and marcasite: via FeS precursors below 100°C. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 55, 1505-1514.

Shuttleworth, R. and Bailey, G.L.J. (1948). The spreading of a liquid over a rough. *Solid. Disc. Farad. Soc.*, 3, 16-22.

Sigg, L., Johnson, C.A. and Kuhn, A. (1991). Redox conditions and alkalinity generation in a seasonally anoxic lake (Lake Greifen). *Mar. Chem.*, 36, 9-26.

Sing K.S.W., Everett D.H., Haul R.A.W., Moscou L., Pierotti R.A., Rouquerol J. and Siemieniowska T. (1985) Reporting physisorption data for gas/solid systems with special reference to the determination of surface area and porosity, *Pure Appl. Chem.* 57, 603-619

Smirnov, A.V. and Tarduno, J.A. (2001). Estimating superparamagnetism in marine sediments with the time dependency of coercivity of remanence. *J Geophys. Res.*, 106, 16135-43.

Snowball, I.F. (1997). Gyroremanent magnetization and the magnetic properties of greigite-bearing clays in southern Sweden. *Geophys. J. Int.*, 129, 624-636.

Spassov, S., Heller, F., Evans, M.E., Yue, L.P. and Ding, Z.L. (2001). The Matuyama/Brunhes geomagnetic polarity transition at Lingtai and Baoji, Chinese loess plateau. *Physics Chem. Earth*, 26, 899-904.

Spassov, S., Heller, F., Kretzschmar, R., Evans, M. E., Yue, L.P. and Nourgaliev, D.K. (2003). Detrital and pedogenic magnetic mineral phases in the loess/palaeosol sequence at Lingtai (Central Chinese Loess Plateau). *Physics Earth Planet. Int.*, 140, 4, 255-275.

Soffel, H.C. (1977). Domain structure of titanomagnetites and its variation with temperature. *J. Geomag. Geoelectr.*, 29, 277-284.

Stacey, F.D. (1962). A generalized theory of thermoremanence, covering the transition from single-domain to multidomain magnetic grains. *Philos. Mag.*, 7, 1887-1990.

Stacey, F.D. and Banerjee, S.K. (1974). *The physical principles of rock magnetism*. Elsevier, Amsterdam, 195 pp.

Stephenson, A. and Snowball, I.F. (2001). A large gyromagnetic effect in greigite. *Geophys. J. Int.* 145, 570-575.

Stoner, E.C. and Wohlfarth, E.P. (1948). A mechanism of magnetic hysteresis in heterogeneous alloys. *Phil. Transac. Roy. Soc. London*, 240, 599-602.

Stoner, J.S., Channel, E.T. and Hillaire-Marcel, C. (1995a). Late Pleistocene relative geomagnetic paleointensity from the deep Labrador sea: regional and global correlations. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 134, 237-252.

Stoner, J.S., Channel, E.T. and Hillaire-Marcel, C. (1995b). Magnetic properties of deep-sea sediments off southwest Greenland: evidence for major differences between the last two deglaciations. *Geology*, 23, 241-244.

Stoner, J.S., Channel, E.T. and Hillaire-Marcel, C. (1996). The magnetic signature of rapidly deposited detrital layers from the deep Labrador sea: relationship to North Atlantic Heinrich layers. *Palaeoceanography*, 11, 309-327.

Strechie, C., André, F., Jelinowska, A., Tucholka, P., Guichard, F., Lericolais, G. and Panin, N. (2002). Magnetic minerals as indicators of major environmental change in Holocene black sea sediments: preliminary results. *Phys. Chem. Earth*, 27, 1363-1370.

Surma, F., Geraud, Y., Pourcelot, L., Gauthier-Lafaye, F., Clavaud, J.B., Zamora, M., Lespinasse, M. and Cathelineau, M. (2003). Porosity microstructures of a sandstone affected by a normal fault. *Bull. Soc. Géol. France*, 174, 3, 295-303.

Surma, F. and Géraud, Y. (2003). Porosity and thermal conductivity of the Soultz-sous-Forêts granite. *PAGEOPH*, 160, 1125-1136.

T

Tarling, D.H. and Hrouda, F. (1993). *The magnetic anisotropy of rocks*. London eds.: Chapman & Hall.

Tarling, D.H. (1983). *Paleomagnetism, principles and applications in geology, geophysics and archaeology*. Chapman et Hall, 379 pp.

- Tauxe, A. (1998). *Paleomagnetic principles and practice*. Kluwer Acad. Publ., Dordrecht.
- Tauxe, L., Mullender, T.A.T. and Pick, T. (1996). Potbellies, wasp-waists, and superparamagnetism in magnetic hysteresis. *J. Geophys. Res.*, 101, 571-583.
- Tauxe, L. (1993). Sedimentary records of relative paleointensity: theory and practice. *Rev. Geophys.*, 31, 319-354.
- Tavenas, F., Leblond, P., Jean, P. and Leroueil, S. (1983), The permeability of natural soft clays. Part II: permeability characteristics. *Can. Geotech. J.*, 20, 645-660.
- Thellier, E. (1938). Sur l'aimantation des terres cuites et ses applications géophysiques. *Ann. I.P.G. Paris*, 16, 157-302.
- Thellier, E. and Thellier, O. (1959). Sur l'intensité du champ magnétique terrestre dans le passé historique et géologique. *Ann. Geophys.*, 15, 285-376.
- Thierry, J., Marchand, D., Fortwengler, D. et Bonnot, A. (sous presse). Les faunes d'ammonites des sondages Andra : bio-chrono-stratigraphie des séries callovo-oxfordiennes de l'Est du Bassin de Paris. *C. R. Geosci.*.
- Thierry, J. et Barrier, E. (2000). Middle Callovian – Map 9. In: *Atlas Peritethys. Paleogeographical Maps* (Eds. J. Dercourt, M. Gaetani, B. Vrielynck, E. Barrier, B. Biju-Duval, M.F. Brunet, J.P. Cadet, S. Crasquin et M. Sandulescu). CCGM CGMW, Paris.
- Thierry, J., Cariou, E., Elmi, S., Mangold, C., Marchand, D. et Rioult, M. (1997). Callovien. In : *Biostratigraphie du Jurassique Ouest-européen et méditerranéen : zonations parallèles et distribution des invertébrés et microfossiles* (Eds. E. Cariou et P.Hantzpergue). *Bull. Centre Rech. Elf, Exploration et Production (Mémoires)* 17, 63-78.
- Thouveny, N., de Beaulieu, J.L., Bonifay, E. , Creer, K.M. , Guiot, J. , Icole, M. , Johnsen, S., Jouzel, J., Reille, M., Williams, T. and Williamson, D. (1994). Climate variation in Europe over the past 140 kyr deduced from rock magnetism. *Nature*, 371, 503-506.
- Tolman, R.C. (1949). The Superficial Density of Matter at a Liquid-Vapor Boundary. *J. Chem. Phys.*, 17, 118-127.
- Torii, M., Fukuma, K., Horng, C.S. & Lee, T.Q. (1996). Magnetic discrimination of pyrrhotite- and greigite-bearing sediment samples. *Geophys. Res. Lett.*, 23/14, 1813-1816.
- Trindade, R.T.F., Raposo, M.I.B., Ernesto, M. and Siqueira, R. (2000). Magnetic susceptibility and partial anhysteretic remanence anisotropies in the magnetite-bearing granite pluton of tourao, NE Brazil. *Tectonophysics*, 314, 443-468.

V

- Van Brakel, J. (1975). Pore space models for transport phenomena in porous media: review and evaluation with special emphasis on capillary liquid transport. *Powder Technology*, 11, 205-236.

Van Geet, M., Bastiaens, W., Maes, N., Weetjens, E., Volckaert, G., Gens, A., Villar, M. V., Filippi, M., Imbert, Ch. and Plas, F. (2005). A large scale in-situ demonstration test for repository sealing in an argillaceous host rock - the RESEAL project. Tours 2nd International Andra conference: Clays in Natural & Engineered Barriers for Radioactive Waste Confinement. Session 15B- HM parameters acquisition and modelling.

Vinsot A. et al. (2004). Oxfordien calcaire. Rapport de synthèse. Laboratoire de Recherche Souterrain de Meuse/Haute-Marne. Rapport Andra n°D.RP.ADPE.04.1109.

W

Walschburn, E.W. (1921). Note on a method of determining the distribution of pores sizes in a porous material. Proc. Nat. Acad. Sci., 7, 115-116.

Wardlaw, N.C. and Taylor, R.P. (1976). Mercury capillary pressure curves and the interpretation of pore structure and capillary behavior in reservoir rocks. Bull. Can. Petrol. Geol., 24, 225-262.

Wardlaw, N.C. (1976). Pore geometry of carbonate rocks as revealed by pore casts and capillary pressure. Am. Assoc. Petrol. Geol. Bull., 60, 245-257.

Wardlaw, N.C. and McKellar, M. (1981). Mercury porosimetry and the interpretation of pore geometry in sedimentary rocks and artificial models. Powder Technology, 29, 127-143.

Wardlaw N.C. and Yu, L. (1988). Fluid topology pore size and aspect ratio during imbibition. Transp. Porous Med., 3, 17-34.

Wardlaw, N.C., Li, Y. and Forbes, D. (1987). Pore-throat size correlation from capillary pressure curves. Transp. Porous Med., 2, 597-614.

Wechsler, B., Lindsley, D.H. and Prewitt, C.T. (1984). Crystal structure and cation distribution in titanomagnetites ($\text{Fe}_{3-x}\text{TixO}_4$). Am. Min., 69, 754-770.

Wenzel, R.N. (1936). Resistance of solid surfaces to wetting by water. Ind. Eng. Chem. 28, 988-994.

Wileveau Y. and Desroches J. (2005a). On the state of stress in non-homogeneous rock masses: a study in a clay formation with application to waste management in France. Eurock 2005 conference, Brno.

Wileveau Y. (2004). Determination of in situ stress at the Meuse/Haute-Marne underground research laboratory, northeastern France. Geophy. Res. abstract., 6, 05876.

Wilkin, R.T. and Barnes, H.L. (1997). Formation processes of framboidal pyrite. Geochim. Cosmochim. Acta, 61, 323-339.

Wohlfarth, E.P. (1958). Relations between different modes of acquisition of the remanent magnetization of ferromagnetic particles. J. Applied Physics, 29, 595-596.

Wohlfarth, E.P. (1982). Ferromagnetic materials, North Holland (Ed.), Amsterdam, 3, 107-188.

X

Xu, S. and Dunlop, D. (1995). Toward a better understanding of the Lowrie-Fuller test. *J. Geophys. Res.*, 100, 22533-22542.

Xu, K., Daian, J.F. and Quenard, D. (1997a). Multiscale structures to describe porous media part I: theoretical background and invasion by fluids. *Transp. Porous Med.*, 26, 51-73.

Xu, K., Daian, J-F. and Quenard, D. (1997b). Multiscale structures to describe porous media part II: transport properties and application to test materials. *Transp. Porous Med.*, 26, 319-338.

Y

Yang, Y., and Aplin, A. C. (1998). Influence of lithology and compaction on the pore size distribution and modelled permeability of some mudstones from the Norwegian margin. *Mar. Petrol. Geol.*, 15, 143-175.

Z

Zijderveld, J.D.A. (1967). AC-demagnetization of rocks: analysis of results. In: Collinson, D.W. et al. (editors), *Methods in Palaeomagnetism*. Elsevier, Amsterdam, 254-286.

Résumé

Afin d'étudier la faisabilité du stockage des déchets radioactifs, l'Andra, (agence nationale française pour la gestion des déchets radioactifs) nous donne l'opportunité d'étudier la formation argileuse du Jurassique devant abriter le laboratoire de Meuse/Haute-Marne, à l'Est du bassin de Paris. Ces roches, datant du Callovien et du début de l'Oxfordien, sont des marnes plus ou moins grises formées d'un mélange d'argiles, de carbonate et de silt. Les échantillons, collectés régulièrement le long de la formation du Callovo-Oxfordien à partir de plusieurs forages verticaux et obliques, ont été le sujet d'une étude de minéralogie magnétique et une étude de la fabrique minérale replacée dans le cadre géographique, elle-même reliée à une étude du réseau poreux et de son anisotropie.

L'étude de minéralogie nous aide à caractériser la nature des fractions para- et ferrimagnétique à l'origine de la susceptibilité et de la rémanence magnétique, qui varient en fonction de la concentration en argile/carbonate/silt, ces silts étant composés en partie de grains de magnétite détritique. Dans les niveaux les plus argileux (illites et smectites), la fraction ferrimagnétique est aussi composée de sulfures de fer authigènes, peut-être de greigite, qui accompagnent les pyrites framboïdes omniprésentes. Cette fraction semble correspondre à la fraction de faible coercivité qui a été utilisée pour la ré-orientation des forages verticaux par rapport au Nord magnétique. La fraction de plus forte coercivité est composée des oxydes de fer détritiques, en accord avec la faible valeur de la rémanence naturelle. Ainsi, la coexistence dans la même roche sédimentaire de sulfures de fer et d'oxydes de fer doit-être reliée à des origines distinctes, plutôt qu'à des conditions variables de sédimentation ou de diagenèse. La préservation de ces espèces est attribuée à la très faible perméabilité que le sédiment a acquis après sa compaction.

L'anisotropie de la susceptibilité magnétique (ASM) reflète l'organisation principalement planaire des minéraux argileux, et éventuellement la fabrique de forme de la fraction ferrimagnétique. Comme on s'y attend, l'axe court de l'ASM (K_3) est vertical (perpendiculaire au litage) avec un degré d'anisotropie de 0,3% à 5%; et un axe long (K_1) qui est constant en direction, autour de N-S dans les niveaux plus argileux et autour de NW-SE dans les niveaux plus silteux. L'origine de cette linéation magnétique peut venir soit d'une compaction anisotrope en direction du dépo-centre, soit, hypothèse que nous préférons, d'une orientation des particules parallèlement à la direction des courants venant du NE (Massifs Bohémien et Rhénan) ou venant du NW (massif Londres-Brabant) pendant la compaction.

La fabrique minérale est comparée à l'anisotropie de la connectivité du réseau poreux dans des lithologies représentatives de la formation. Pour documenter l'anisotropie de connectivité, nous avons réalisé des injections au mercure sous haute pression parallèlement aux axes de l'ASM. Nous avons également réalisé des mesures d'ASM après imprégnation avec un ferrofluide sous différentes pressions, dans le but d'obtenir la forme du réseau poreux. A partir de ces données, nous tentons de proposer trois modèles de pore. Dans le premier modèle, valable pour les échantillons les plus silteux, des chemins verticaux semblent contrôler la connectivité. Le second modèle, correspond aux échantillons les plus carbonatés où la plus forte connectivité, parallèle au litage, est quasiment isotrope dans le plan de litage malgré des formes de pore anisotropes. Enfin dans le troisième modèle, porté par les échantillons les plus argileux et les plus imperméables au niveau du laboratoire Andra, la connectivité est également parallèle au litage, et, dans ce plan, le grand axe de connectivité est parallèle à la linéation magnétique.

En conclusion, outre la modélisation pétrophysique du réseau poreux en relation avec la micro-texture de la roche, notre approche minéralogique nous aide à confirmer, et localement à affiner, la stratigraphie séquentielle de cette partie du Jurassique qui correspond à un épisode de refroidissement entre deux épisodes plus chauds marqués par des plateformes carbonatées. Notre approche minéralogique associée aux considérations de fabrique, nous aide à proposer un scénario original de dynamique des apports sédimentaires.