



HAL
open science

Caractérisation expérimentale des propriétés de poromécaniques et de transfert de l'argilite du CO_x

Haifeng Yuan

► **To cite this version:**

Haifeng Yuan. Caractérisation expérimentale des propriétés de poromécaniques et de transfert de l'argilite du CO_x. Génie civil. Ecole Centrale de Lille, 2017. Français. NNT : 2017ECLI0030 . tel-01801088v1

HAL Id: tel-01801088

<https://theses.hal.science/tel-01801088v1>

Submitted on 28 May 2018 (v1), last revised 19 Jun 2018 (v2)

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.

N° d'ordre : 346

CENTRALE LILLE

THESE

présentée en vue

d'obtenir le grade de

DOCTEUR

Spécialité : Génie Civil

par

Haifeng YUAN

DOCTORAT DELIVRE PAR CENTRALE LILLE

Titre de la thèse

Caractérisation expérimentale de propriétés poromécaniques et de transfert de l'argilite du COx

Soutenue le 20 décembre 2017 devant le jury d'examen :

Président	N. Burlion, Professeur, Université Lille 1
Rapporteur	A. Giraud, Professeur, Université de Lorraine
Rapporteur	V. Picandet, Maitre de Conférences/HDR, Université de Bretagne Sud
Examineur	N. Conil, Ingénieur R&D, Andra
Examineur	L. Jeannin, Ingénieur HDR, Stroengy
Directeur de thèse	F. Skoczylas, Professeur, Centrale Lille/LML

Thèse préparée au Laboratoire de Mécanique de Lille (LML CNRS FRE3723)

Ecole Doctorale SPI 072 (Lille I, Lille III, Artois, ULCO, UVHC, Centrale Lille)

Remerciements

Je voudrais exprimer mes plus profonds remerciements envers mon directeur de thèse, Frédéric SKOCZYLAS et de m'avoir fait confiance tout au long de mes travaux de thèse. Cher Professeur, votre disponibilité, vos précieux conseils, vos idées intéressantes et votre bonne humeur tout au long de ce travail ont constitué un soutien infailible. Ce fut un grand honneur d'avoir été suivis par vous, je n'oublierai jamais votre amiable aide durant ces trois années.

Je remercie également Madame Nathalie CONIL et Monsieur Jean TALANDIER pour leurs collaborations considérables, leurs expériences riches et la fourniture des échantillons.

J'adresse mes remerciements à Messieurs Albert GIRAUD et Vincent PICANDET qui m'ont fait l'honneur d'être rapporteurs de ce mémoire, ainsi qu'à Monsieur Nicolas BURLION et Laurent JEANNIN d'avoir contribué à ce travail. J'ai beaucoup apprécié les critiques et conseils de tous les membres du jury.

J'adresse très amicalement mes remerciements à tous les membres de notre laboratoire : Franck AGOSTINI, Catherine DAVY, Thierry DUBOIS, Laurent LECONTE, Marie-Claude WILLEMETZ, Ludovic POTIER et Brigitte WAROCQUIER pour l'aide qu'ils m'ont apporté lors de la réalisation des essais et leur amitié. Je remercie également mes chers amis et collègues de notre laboratoire : Wei, Jiangfeng, Yang, Yi, Yan, Cong, Baptiste, Charles, Yifan, Dongmei et Jianjian pour leur amitié. Je remercie particulièrement Zhibo et Nicolas pour leur amitié et nombreux coups de mains pendant ma thèse.

Un grand merci à tous les amis de Centrale Lille et Lille 1 pour les bons moments partagés avec eux.

Enfin, un grand merci à ma famille pour son soutien permanent, je lui dédie cette thèse.

Table des matières

Introduction générale	1
Contexte industriel	1
Objectifs de cette recherche	4
Plan du manuscrit	4
Chapitre 1 Etat de l'art	6
1.1 Description de l'argilite du Callovo-Oxfordien	6
1.1.1 Lithologie et composition minéralogique	6
1.1.2 Les caractéristiques de la microstructure	8
1.1.3 Rétention d'eau	9
1.1.4 Gonflement	12
1.1.5 Perméabilité au gaz	15
1.1.6 Perméabilité à l'eau	18
1.2 Rappels sur les études du coefficient de Biot de l'argilite	19
1.2.1 Loi de la contrainte effective	20
1.2.2 Etat de l'art sur le coefficient de Biot de l'argilite	21
1.3 Le gonflement induit par l'adsorption dans les roches argileuses	22
1.3.1 Le phénomène d'adsorption	22
1.3.2 Le mécanisme du gonflement induit par adsorption	22
1.3.3 Etat de l'art sur le gonflement induit par l'adsorption de gaz dans les roches argileuses	24
1.4 L'effet de la température sur l'argilite du COx	25
1.4.1 Essai in-situ sur l'effet thermique.....	25
1.4.2 Essai au laboratoire sur l'effet thermique	28
Chapitre 2 Mesure du coefficient de Biot de l'argilite partiellement saturée	29
2.1 Introduction	29
2.2 Préparation des échantillons	29
2.3 Méthodes expérimentales, procédures d'essais	32
2.3.1 Méthodes expérimentales.....	32
2.3.3 Procédure expérimentale.....	34
2.4 Résultats et analyses	35
2.4.1 Résultats pour le matériau issu de la cellules EST51335 - mesures des déformations	35
2.4.2 Résultats pour le matériau issu de la cellules EST51446 - mesures des déformations	38
2.5 Discussion sur les composantes du tenseur de Biot	39

2.6 Conclusion	43
Chapitre 3 Étude des composantes « apparentes » du tenseur de Biot suite à l'adsorption-gonflement de l'argilite.....	45
3.1 Introduction	45
3.2 Essais supplémentaires sur le couplage fluide squelette avec adsorption	45
3.2.1 Préparation des échantillons	45
3.2.2 Procédure expérimentale.....	47
3.2.3 Résultats et analyses.....	48
3.3 Effets de l'adsorption-gonflements sur l'argilite, comparaison avec d'autres matériaux.....	48
3.3.1 Préparation des échantillons	56
3.3.2 Méthode expérimentale	57
3.3.3 Résultats et analyses.....	60
3.4 Conclusion	69
Chapitre 4 Etude expérimentale des propriétés de transfert de gaz dans l'argilite au cours de phases de séchage/imbibition.....	71
4.1 Introduction	71
4.2 Préparation des échantillons	71
4.3 Méthodologie expérimentale.....	72
4.3.1 Protocole expérimental	72
4.3.2 Méthode pour déterminer la porosité à l'eau et la saturation des échantillons	74
4.3.3 Méthode de mesure du volume de pore accessible au gaz	74
4.3.4 Méthode de mesure de la perméabilité au gaz.....	76
4.4 Résultats	77
4.4.1 Propriétés de rétention d'eau	77
4.4.2 Evolution du volume de pores en phase de séchage / imbibition	79
4.4.3 Variation de la perméabilité sous confinement lors phases de séchage/ et d'imbibition.....	84
4.4.4 Relation entre la perméabilité relative au gaz et le volume relatif de pore.....	86
4.6 Conclusion	87
Chapitre 5 Mesures de la perméabilité à l'eau et du coefficient de Biot de l'argilite...	89
5.1 Introduction	89
5.2 Préparation des échantillons	89
5.3 Méthodologie expérimentale.....	91
5.4 Résultats et discussion.....	92

5.4.1 Perméabilité à l'eau pendant et après la saturation.....	92
5.4.2 Effets du confinement et de la pression d'injection sur la perméabilité à l'eau	95
5.4.3 Variation de la perméabilité à l'eau à même niveau de contrainte effective de Terzaghi	96
5.4.4 Tentatives de mesure du coefficient de Biot « à l'eau ».....	98
5.5 Conclusion	99
Chapitre 6 Etude préliminaire des effets thermiques sur les propriétés poromécaniques et de transport de l'argilite.....	101
6.1 Introduction	101
6.2 Essai de chauffage non drainé – EST51446-34.....	102
6.2.1 Dispositif expérimental.....	102
6.2.2 Méthodologie expérimentale	102
6.2.3 Résultats et analyses.....	103
6.3 Essai de chauffage drainé – Mesure du coefficient de Biot et perméabilité au gaz	106
6.3.1 Dispositif expérimental.....	106
6.3.2 Méthodologie expérimentale	107
6.3.3 Mesure du coefficient de Biot	109
6.3.4 Perméabilité au gaz	111
6.4 Conclusion	113
Chapitre 7 Conclusions et perspectives.....	115
7.1 Conclusions.....	115
7.2 Perspectives.....	117
Reference.....	119

Introduction générale

Contexte industriel

L'élimination des déchets nucléaires de haute, moyenne activité et vie longue (HA-MAVL) devient une question urgente pour de nombreux pays industrialisés ayant un important programme nucléaire. Une solution possible pour ce problème est de disposer les déchets nucléaires dans une formation géologique profonde, de types granitiques (Suède, Canada, Chine notamment) ou argileuses (France, Belgique, Suisse notamment) (cf. tableau 1). Dans le cas de la France, une agence nommée l'Andra (L'Agence Nationale de gestion des Déchets Radioactifs) est chargée pour la gestion à long terme de tous les déchets radioactifs produits. Depuis 1991, l'Andra a engagé l'étude du stockage en formation argileuse profonde pour les déchets HA-MAVL. Un élément clé est l'étude du site de Bure (Meuse/Haute-Marne – MH-M) et d'une roche argileuse dure âgée d'environ 155 millions d'années, le Callovo-Oxfordien (COx), qui avec une faible perméabilité, est tectoniquement stable, et située à une profondeur environ -400 à -600m¹ (cf. figure 1). Afin de garantir la sécurité pour l'homme et l'environnement, il est très important d'étudier le comportement à court et long terme des stockages des déchets nucléaires HA-MAVL, l'Andra a établi un *Underground Research Laboratory (URL)* près du village de Bure, qui se situe à l'est de la France, pour effectuer des essais in-situ destinés à étudier le comportement de la roche hôte. De plus, afin d'approfondir l'étude des propriétés de la roche, l'Andra effectue des essais internes en collaboration avec des partenaires universitaires et des laboratoires français et étrangers.

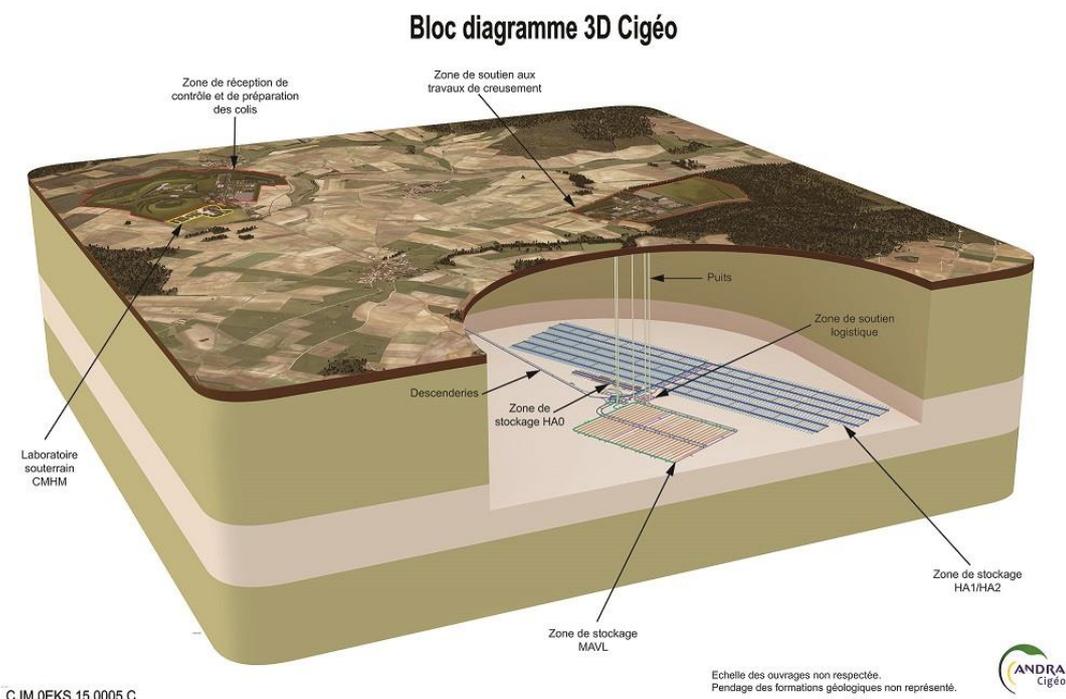


Figure 1 - Schéma 3D de principe des installations²

Dans le concept de stockage des déchets nucléaires, le stockage des déchets qui sont effectués dans la roche hôte doit être réversible, c'est-à-dire que les déchets doivent pouvoir être extraits du site à tout moment pendant 100 ans. Cependant, pendant toute la durée l'exploitation, la roche hôte est assez profondément perturbée par les couplages et effets thermo-hydro-mécanique-chimique. Tous ces effets risquent d'entraîner le dommage de la roche hôte, de plus, menacent la sécurité de stockage.

Premièrement, en tant que roche hôte de déchets radioactifs l'argilite du COx sera soumise à des cycles de séchage-imbibition dus à l'excavation, la ventilation et l'activité thermique des déchets exothermiques. La construction des tunnels va contribuer aux changements d'états de contrainte et de saturation de la roche, et la création d'une *Excavation Damaged Zone (EDZ)* qui risque le plus de dommage (cf. figure 2). Tout cela aura un effet sur la structure poreuse et sur l'apparition de zones plus ou moins fissurées. Toutes ces sollicitations doivent être soigneusement étudiées pour être mis en compte pour la sûreté des installations et parmi elles l'influence de l'humidité relative, du confinement et de la pression de pore sur le comportement poromécanique doit être l'objet d'une attention particulière. De plus, lors du stockage de déchets à haute activité-, il est envisagé des augmentations locales de température dans la roche hôte due à la chaleur dégagée par les déchets (cf. figure 3), qui pourraient conduire à la fracturation de la roche liée à différence de dilatation de l'eau et du squelette dû à l'augmentation de la pression de pore. Par conséquent, le comportement poromécanique de l'argilite partiellement saturée, en condition de température, doit également être étudié. Finalement, après la fermeture du stockage, l'argilite va localement évoluer suite à un processus de resaturation par infiltration d'eau provenant de la roche. Afin d'évaluer la bonne étanchéité de l'argilite après le processus de resaturation, l'étude de la perméabilité à l'eau et du comportement poromécanique de l'argilite aussi doit être effectuée.

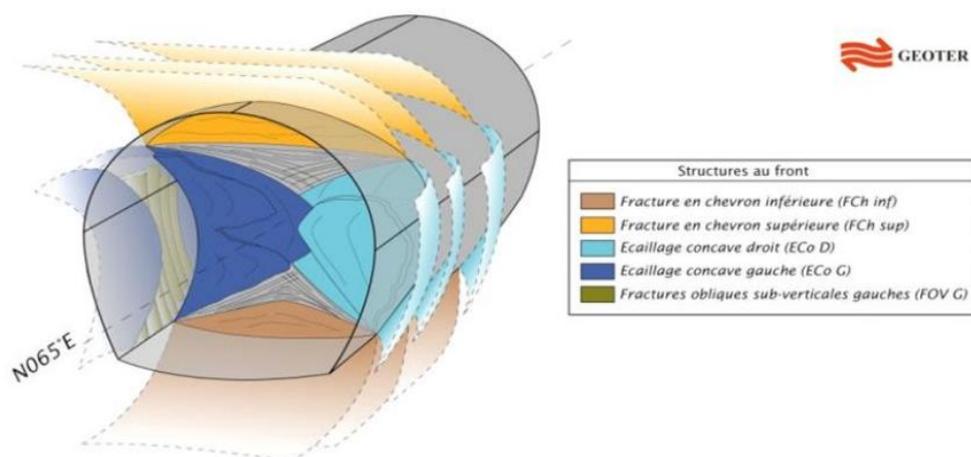


Figure 2 - Schéma des fractures de l'EDZ dans la galerie SDZ du laboratoire du Bure¹

Tableau 1 - Principaux laboratoires souterrains de recherche à étudier le stockage profond des déchets radioactifs

Pays	Laboratoire souterrain	Roche hôte	Organisation gestionnaire	Remarques
France	Laboratoire de Bure (Meuse/Haute Marne)	Argilite du Callovo-Oxfordien (roche argileuse)	Andra	Etude de faisabilité du stockage des déchets HA et MA-VL dans le COx à - 490m de profondeur.
France	Laboratoire de Tournemire (Aveyron)	Argilite (roche argileuse)	IRSN	Ancien tunnel ferroviaire, en service depuis 1990 pour l'étude du stockage profond à -250m de profondeur.
Suisse	Laboratoire de Mont-Terri	Argilite à Opalinus (roche argileuse)	SHGN	Laboratoire creusé dans la montagne du Jura, à -300m de profondeur, à partir d'un tunnel d'autoroute, exploité à partir de 1995 pour étudier la faisabilité du stockage profond des déchets nucléaires et notamment l'EDZ.
Belgique	Laboratoire de HADES (Mol-Dessel)	Argile plastique de Boom entre 190 à -290m de profondeur	SCK CEN	Laboratoire à -223m de profondeur, destiné à l'étude du stockage profond des déchets radioactifs et exploité depuis 1980.
Suède	Laboratoire Aspö	Granite à -460 m de profondeur	SKB	Galerie creusée à partir d'un tunnel menant à une centrale hydroélectrique, à partir de 1995. Le concept étudié repose sur le principe des barrières ouvragées en bentonite.
Canada	Laboratoire du Lac du Bonnet (Manitoba)	Granite à -240 à -420m de profondeur	AECL	En service depuis 1984.
Chine	En cours	Granite	CNNC	Laboratoire est préliminairement choisi à la site de Beishan, Ganshun.

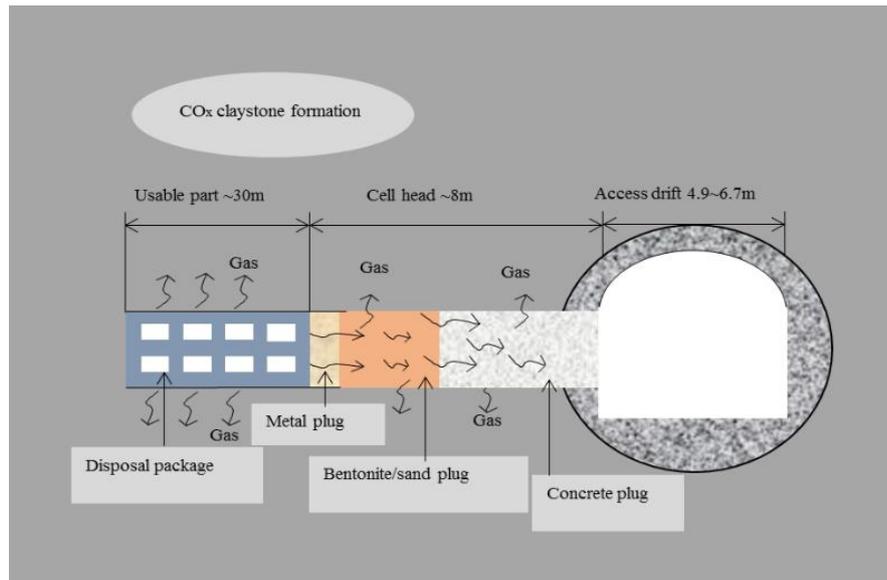


Figure 3 - Schéma de production du gaz et émission de chaleur de la stockage^{3,4}

Objectifs de cette recherche

Cette thèse est une poursuite des travaux abordés dans la thèse de Sophie Cariou « Couplage hydro-mécanique et transfert dans l'argilite de Meuse/Haute-Marne : approches expérimentale et multi-échelle »⁵. Afin d'améliorer notre compréhension des propriétés de poromécanique et transfert de l'argilite sous la condition du couplage hydro-mécanique, nous avons utilisé un nombre plus important d'échantillons de différentes carottes avec différentes teneurs en eau pour les essais de poromécanique, perméabilité au gaz et perméabilité à l'eau. Après avoir vérifié que le coefficient de Biot de l'argilite sèche est supérieur à 1 lorsqu'il est mesuré par l'injection d'argon, nous avons comparé et analysé plus finement nos séries d'essais pour vérifier si ces valeurs « non-logiques » sont causées par l'adsorption-gonflement du matériau. Finalement, après avoir étudié l'effet de couplage hydro-mécanique (*HM coupling*), nous avons abordé l'effet de couplage thermo-hydro-mécanique (*THM coupling*) sur l'argilite des propriétés de transfert et poromécanique.

Plan du manuscrit

Cette thèse est composée de six chapitres, le manuscrit est organisé de la façon suivante :

Le chapitre 1 présente une étude bibliographique sur plusieurs caractéristiques de l'argilite du CO_x telles que les propriétés de rétention d'eau, le gonflement, le transfert de gaz et d'eau. En parallèle, afin d'étudier le coefficient de Biot de l'argilite, les théories de base de la poroélasticité des milieux poreux sont rappelées. Une étude bibliographique sur l'adsorption-gonflement des roches argileuses est succinctement présentée pour justifier la capacité potentielle de l'adsorption-gonflement de l'argilite. Finalement, l'étude sur l'effet de la thermique de l'argilite sera présentée.

Le chapitre 2 présente la mesure du coefficient de Biot de l'argilite par une technique de mise en pression interne avec du gaz. On présente tout d'abord le programme expérimental sur l'essai poromécanique. Ensuite, on étudie les résultats du coefficient de Biot qui sont obtenus sur des échantillons de différentes carottes et différente teneur en eau. Finalement, on discute plus en détail les effets du confinement et de la pression du gaz sur les composantes du tenseur de Biot. L'obtention de composantes inattendues, largement supérieures à 1, pourrait être due à un gonflement du matériau suite à l'adsorption d'argon dans la micro et/ou méso porosité de l'argilite, ceci justifie le développement du chapitre 3.

Le chapitre 3 se concentre sur l'étude des composantes « non-logiques » du tenseur de Biot de l'argilite. Tout d'abord, un plus grand nombre d'échantillons de différentes carottes ont été testés pour mesurer le coefficient de Biot afin de vérifier que les valeurs « non-logiques » ne sont pas causées par des erreurs expérimentales. Trois types de gaz (hélium, argon, CO₂), avec différentes capacités d'adsorption, ont été utilisés pour mesurer le coefficient de Biot et la perméabilité au gaz. Les résultats montrent que l'adsorption-gonflement a un effet significatif sur les propriétés poromécaniques et de transfert au gaz. Finalement, afin de clarifier notre compréhension du mécanisme de l'adsorption-gonflement de l'argilite, une comparaison d'une série d'essais pour trois matériaux à savoir le mortier, le grès et l'argilite, est présentée dans la dernière partie de ce chapitre.

Le chapitre 4 étudie les propriétés de transfert de gaz de l'argilite sous chemins de séchage ou d'imbibition. Deux séries d'essais sont effectuées. La perméabilité au gaz et le volume accessible au gaz sont mesurés graduellement dans le chemin de séchage ou d'imbibition. Basée sur les résultats expérimentaux, la différence des propriétés de transfert de gaz est comparée et discutée. Par ailleurs, la relation entre la perméabilité au gaz et le volume accessible au gaz est également discutée à la fin de ce chapitre.

Le chapitre 5 est consacré à l'étude la perméabilité à l'eau et à la mesure du coefficient de Biot par injection d'eau. Des échantillons de différentes tailles sont saturés soit à l'eau pure, soit à l'eau de site. Après saturation, une étude de l'effet de la pression de confinement et de celle d'injection sur la perméabilité à l'eau est présentée. Finalement, le coefficient de Biot de l'argilite est évalué.

Le chapitre 6 aborde les effets thermiques sur les propriétés poromécaniques et de transfert de l'argilite. Tout d'abord, un essai de chauffage non drainé est effectué pour étudier l'effet de thermique sur le transfert de l'eau. Le travail se poursuit par l'étude de l'effet thermique sur le coefficient de Biot et le transfert de gaz sur des échantillons partiellement saturés. Tous les essais (et surtout celui sous température) sont conduits sur un montage expérimental spécialement conçu pour cette étude.

Chapitre 1 Etat de l'art

1.1 Description de l'argilite du Callovo-Oxfordien

1.1.1 Lithologie et composition minéralogique

L'argilite de Bure est extraite de la strate dite du Callovo-Oxfordien du site Meuse-Haute Marne (MHM) autour du laboratoire de recherche in-situ (URL) de l'Andra à Bure (cf. figure 1.1). C'est une roche sédimentaire déposée depuis 155 millions d'années (la limite Jurassique moyen-supérieur) entre la couche de Dogger calcaire et la couche de Oxfordien calcaire (cf. figure 1.2)⁶. L'épaisseur de cette couche est environ 130m, située entre -422 et -554m sous terre. La formation d'argilite de Bure correspond à l'unité C2. Précisément, elle est divisée verticalement en quatre lithofaciès, notés de bas en haut par C2a, C2b, C2c, C2d (cf. figure 1.2)⁷. Cette division correspond à une hétérogénéité verticale du matériau qui devient plus limoneux et riche en carbonates vers les unités supérieures. La différence de composition minérale entre ces lithofaciès va induire une variabilité des propriétés du matériau telles que la porosité, la perméabilité, le gonflement, le fluage et affecter la capacité de scellement.

L'argilite de Bure est principalement composée d'une matrice argileuse, de quartz et de carbonate (cf. figure 1.3). Les proportions moyennes sont environ de 45 ± 7 % d'argile, 23 ± 4 % de quartz, 27 ± 9 % de carbonate (calcite). L'argilite contient également d'autres minéraux dits « lourds », essentiellement environ de 5% de feldspath, pyrite et d'oxydes métalliques⁸. Selon le lithofaciès, cette composition minéralogique varie avec la profondeur. La matrice argileuse comprend environ 40% d'illite, 30% de kaolinite, 5% de chlorite et 25% de minéraux gonflant (tels que la smectite)⁹. De ce fait l'argilite possède une capacité de gonflement susceptible de modifier la structure poreuse pendant les processus de séchage ou d'imbibition conduisant à une évolution de la porosité avec la saturation. Ces variations de porosité pourraient avoir des effets significatifs sur les propriétés poromécaniques telles la compressibilité (ou les modules élastiques)¹⁰⁻¹².

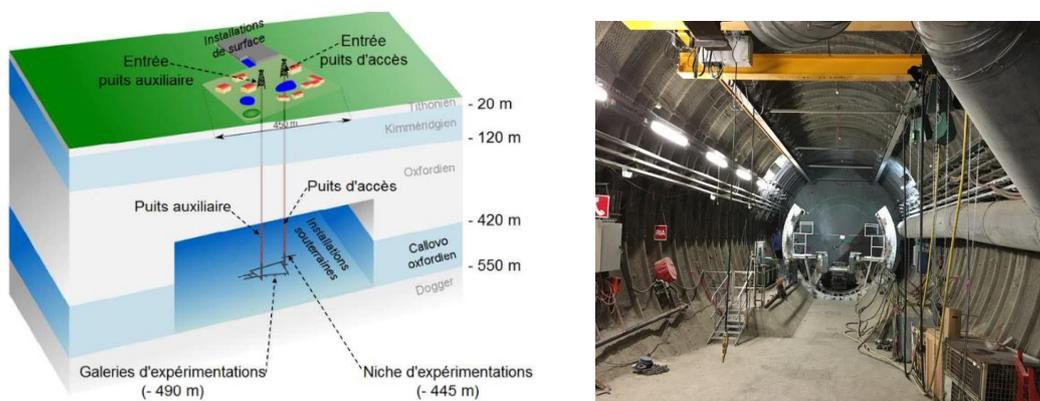


Figure 1.1 - Laboratoire de recherche souterrain du site de Meuse/Haute-Marne (URL)¹

(Depth measured from the URL main shaft downwards - Geological data from boreholes EST204/205 et 211 pro.) Mineralogy from borehole EST207

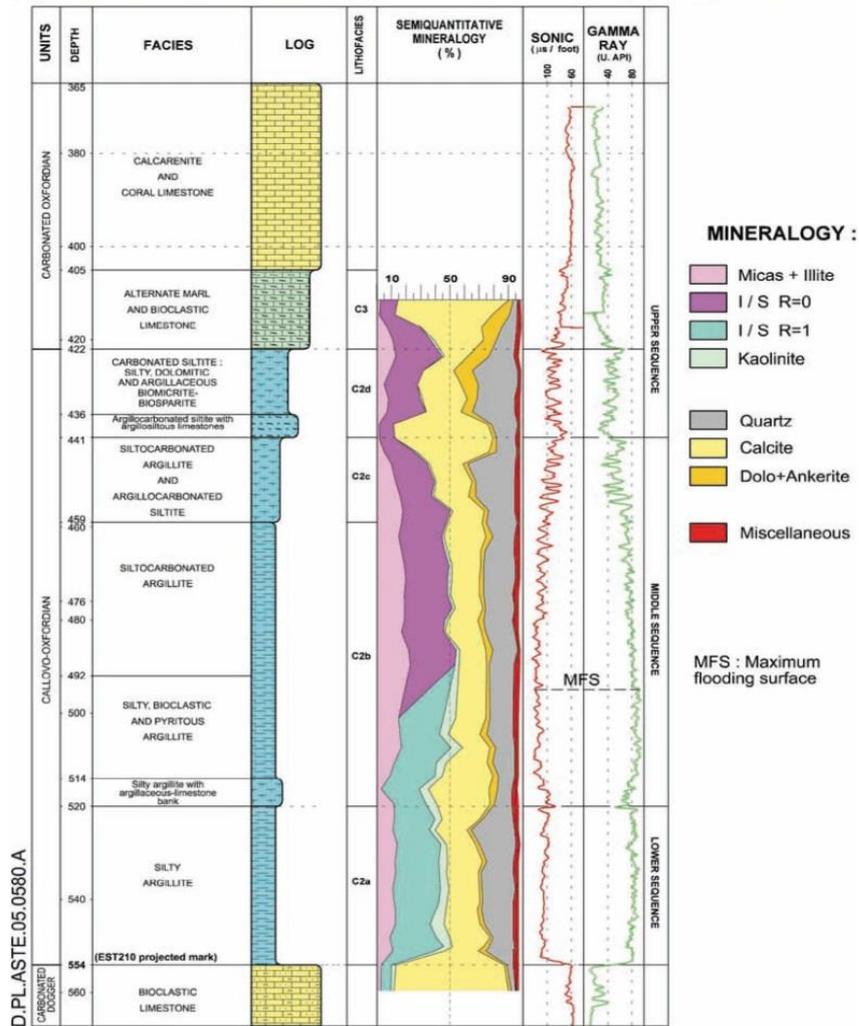


Figure 1.2 - Lithologie et minéralogie des argilites du Bure à l’aplomb du laboratoire souterrain de recherche du Bure (Meuse/Haute-Marne)¹

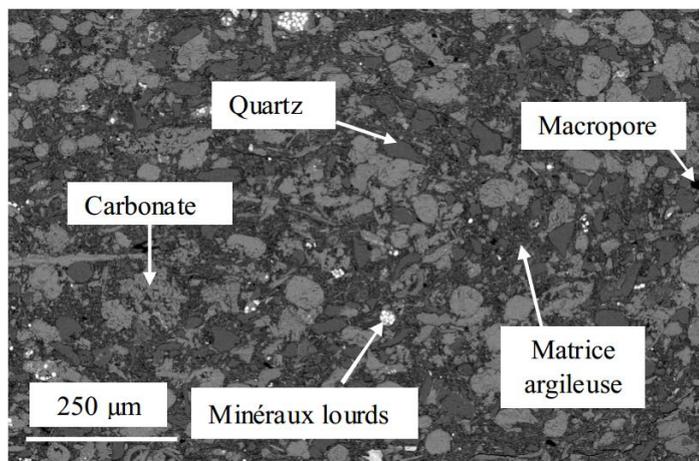


Figure 1.3 - Composition minéralogique de l’argilite observée au MEB¹³

1.1.2 Les caractéristiques de la microstructure

La microstructure de l'argilite du Bure a été étudiée par des nombreux chercheurs avec de nombreuses méthodes telles le MEB (Microscopie Electronique à Balayage)^{13, 14}, FIB/MEB (Focused Ion Beam/ Microscopie Electronique à Balayage)¹⁵, MET (Microscopie Electronique en Transmission)¹⁶, Micro-CT (la microtopographie d'adsorption de rayons X)^{13, 17}. Généralement, cette roche est considérée comme étant un matériau poreux avec une structure multi-échelle, de micro à macro (cf. figure 1.4). A l'échelle micro, les minéraux argileux ont une organisation complexe avec plusieurs sous-échelles où se trouvent des feuillets, des particules, des grains et des pores. A l'échelle méso, l'argilite est constituée par des grains minéraux facilement observables (quartz et calcite) et la matrice argileuse. Dans le cadre de la structure multi-échelle, les pores sont classifiés selon leur taille:

- Les micropores ($\varnothing \leq 2\text{nm}$), qui sont situés dans les espaces internes de la matrice argileuse. On appelle aussi ces pores, pores intra-particulaires. En fait, ce type de pores existe en grande partie dans la roche argileuse.

- Les mésopores ($2\text{nm} < \varnothing \leq 50\text{nm}$) représentent la majeure partie des pores de l'argilite. Ils se situent entre les particules argileuses ou entre les agrégats argileux. On appelle aussi ces pores, pores inter-particulaires.

- Les macropores ($\varnothing > 50\text{nm}$), qui existent principalement à l'interface entre la matrice argileuse et les grains minéraux.

A la suite de différents types d'observation (notamment MEB, Micro-CT, porosimétrie au mercure, l'adsorption d'azote), la microstructure de l'argilite a pu être représentée par un modèle conceptuel largement utilisé par nombreux chercheurs^{6, 18, 19} (cf. figure 1.5). On peut observer que les grains minéraux (quartz et calcite) sont inclus dans la matrice argileuse, et il y a une distribution de macro fissures dans le matériau. Le modèle définit les pores inter-particulaires et les pores intra-particulaires qui se situent entre ou dans les particules argileuses. On peut de plus mentionner que les minéraux gonflants, essentiellement les smectite et les interstratifiés illite/ smectite (I/S)^{14, 20, 21}, peuvent gonfler lors de l'adsorption d'absorbant tels l'eau, l'azote ou le gaz carbonique. Cette adsorption-gonflement peut induire un changement de la microstructure, qui affectera les propriétés de transport et poro(mécaniques) du matériau. Nous étudierons plus précisément cette propriété dans le chapitre suivant.

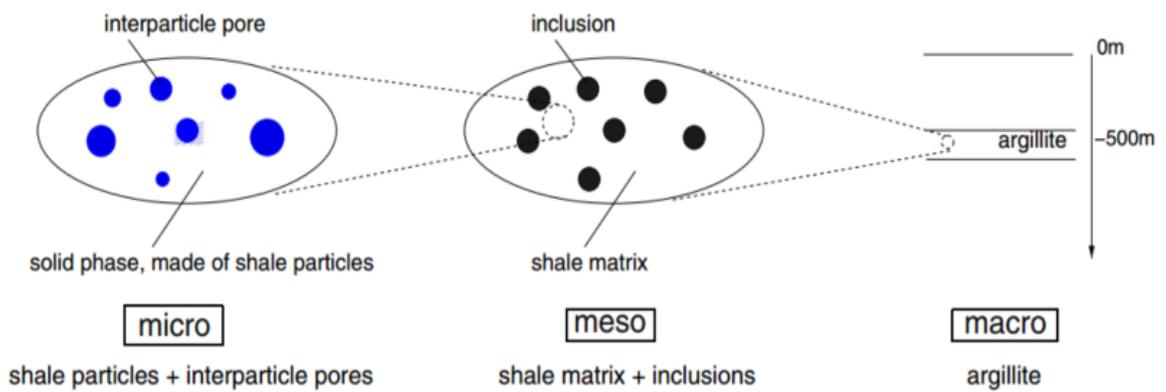


Figure 1.4 - Description de la multi-échelle pores de l'argilite de micro à macro¹⁸

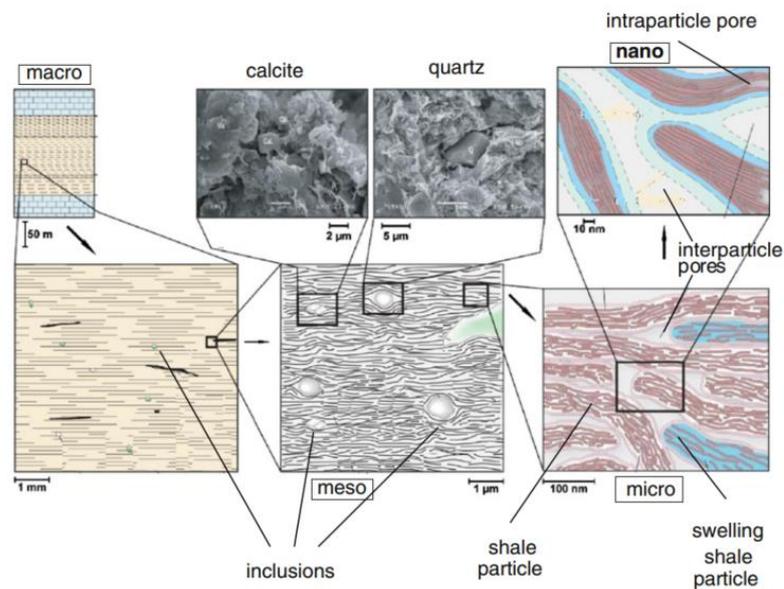


Figure 1.5 - Description de la microstructure de l'argilite¹⁸

1.1.3 Rétention d'eau

La réalisation d'un stockage de déchets nécessite d'excaver la roche et l'argilite autour des tunnels subit un processus de désaturation suivi d'un processus de resaturation lors de la fermeture des tunnels. Pour comprendre plus précisément le comportement de l'argilite dans ces conditions complexes, il est très important d'évaluer les propriétés de rétention d'eau sous chemin de séchage et d'imbibition.

1.1.3.1 Les mécanismes de rétention d'eau

La rétention d'eau des géomatériaux est un phénomène complexe qui dépend de la nature des constituants minéraux et organiques et de leur mode d'assemblage à différentes échelles et jouer sur la structure poreuse. L'humidité relative extérieure est en général le moteur qui va piloter la teneur en eau. Pour l'argilite, on distingue souvent trois phases différentes dans le

processus de transfert d'eau sous augmentation d'humidité relative pour passer de l'état sec à saturé ²² (cf. figure 1.6):

- A faible humidité relative ($HR < 10\%$ à 20°C), les molécules d'eau s'adsorbent sur la surface des pores sous l'effet des forces de Van der Waals jusqu'à former une monocouche²³. Le mécanisme de transfert majeur pour cette phase est la diffusion de vapeur.
- A humidité intermédiaire ($10\% \leq HR < 40-50\%$), les molécules d'eau continuent à être adsorbées par le matériau, pour, avec l'augmentation de HR, atteindre un nombre maximal de 5 ou 6 couches sur la surface du pore, soit 10 à 12 couches pour un pore²⁴. Le mécanisme majeur de transfert pour cette phase reste la diffusion.
- A une humidité relative plus élevée ($HR \geq 40-50\%$), les couches multimoléculaires d'eau se rejoignent entre elles et, au début de la condensation capillaire, l'eau liquide sature d'abord les pores plus petits (de 2 à 3nm), puis occupe progressivement des pores de taille croissante. On peut penser qu'un gradient de pression d'eau existe au sein du poreux multi-échelle lors de ce remplissage continu. Le mécanisme principal de transfert lors de la condensation capillaire reste la diffusion avec a priori quelques mouvements d'eau liquide pilotés par la perméabilité relative à l'eau.

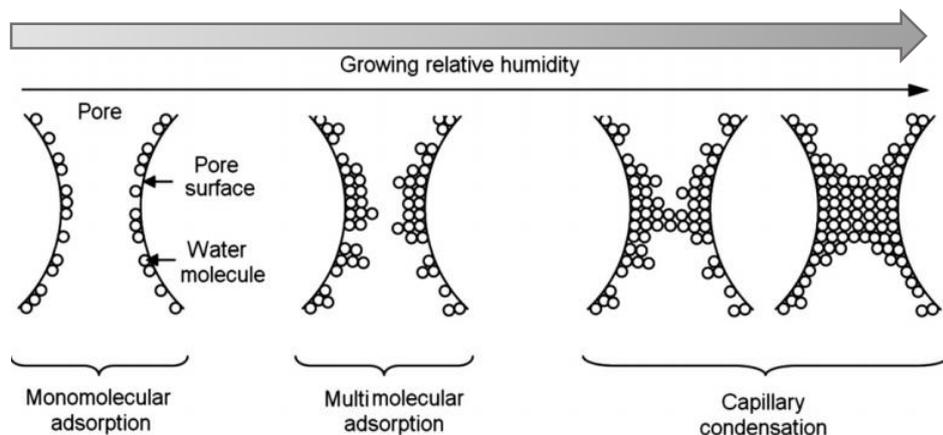


Figure 1.6 - Schématisation du processus de transfert de l'eau dans un pore capillaire lors de l'augmentation de l'humidité relative (Modifié de^{22, 24})

1.1.3.2 Courbe de rétention d'eau

La principale fonction de la courbe de rétention d'eau est de donner « une » relation entre la teneur en eau et l'humidité relative d'équilibre (souvent traduite en terme de succion capillaire qui est déjà un parti pris de modélisation). A l'origine, cette conception a été utilisée pour les sols. Mais, l'argilite étant par nature argileuse, sa capacité de rétention d'eau a été étudiée par nombreux auteurs car elle est liée de nombreuses propriétés (et variation de propriété) de celle-ci. On peut citer, par exemple, la perméabilité, des changements de volume (gonflement ou retrait), les propriétés mécaniques, etc²⁵⁻²⁸.

M'Jahad Sofia²⁴ a mené une série d'essais pour étudier cette capacité de rétention d'eau et les résultats expérimentaux qu'elle a obtenus s'inscrivent bien dans un modèle de Van Genuchten, voir la figure 1.7. Elle a confirmé que la saturation initiale affecte l'isotherme de sorption de l'argilite, les paramètres n et Pr utilisés dans ce modèle sont plus élevés pour l'argilite en phase de désorption (saturation initiale élevée) qu'en phase d'imbibition (saturation initiale faible). Prolongeant le travail de Sofia M'Jahad²⁴, Song²⁹ a présenté une étude sur les hystérésis de sorption-désorption de l'argilite. En utilisant des échantillons en conditions bloquées ou libres, il a pu vérifier l'influence du gonflement de l'échantillon sur l'isotherme de sorption. Les résultats sont présentés à la figure 1.8. Il a montré que la saturation en phase de sorption est toujours inférieure à celle en phase de désorption donnant une hystérésis claire. Wan³⁰ et Menaceur¹⁷ ont également étudiés la rétention d'eau de l'argilite et ont prouvé que l'état initial de l'échantillon affecte notablement les isothermes de sorption-désorption et la courbe de rétention d'eau.

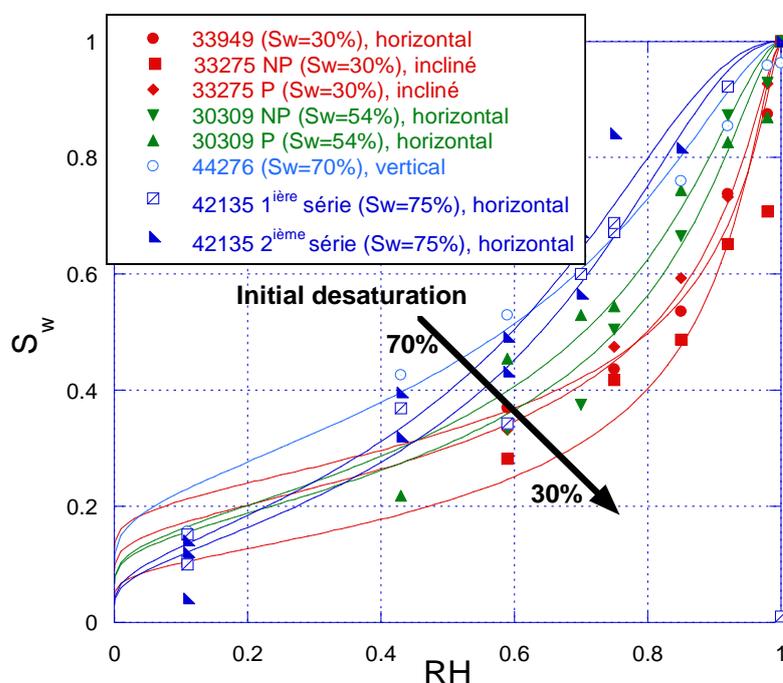


Figure 1.7 - Isothermes de sorption de l'argilite du COx de l'étude, effet de la saturation initiale²⁴

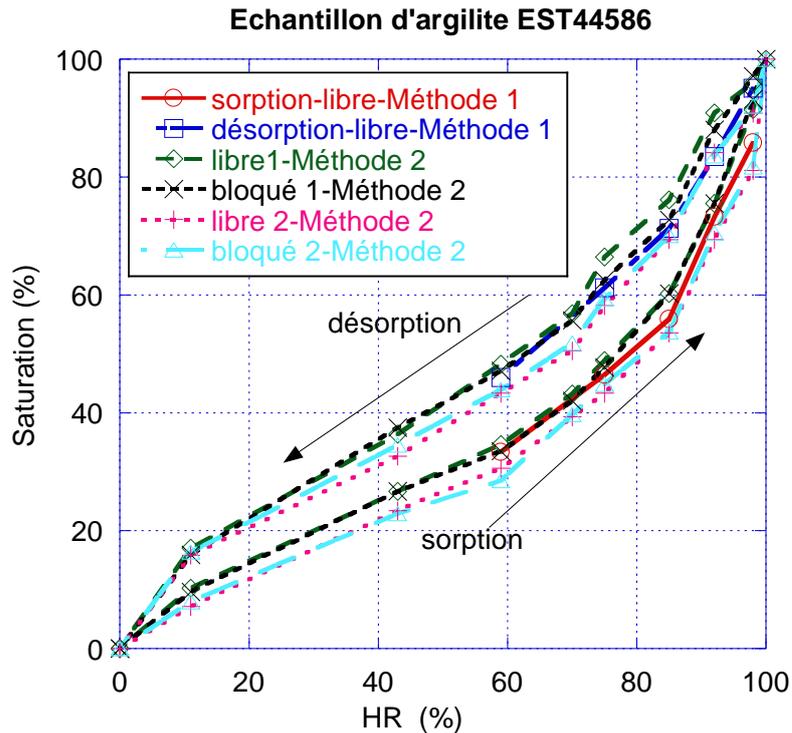


Figure 1.8 - Isothermes de sorption des échantillons EST44586, effet de la saturation initiale et le blocage²⁹

1.1.4 Gonflement

Pour le stockage des déchets nucléaires HA-MAVL dans la roche hôte, les capacités de gonflement de l'argilite sont très importantes car elles participent à l'efficacité du scellement. Dans ce chapitre, nous passerons en revue certaines recherches sur ce sujet.

1.1.4.1 La structure de la smectite

Nous savons que le gonflement de l'argilite est principalement attribué à la présence de smectite^{31, 32} et à sa structure à l'échelle moléculaire. Les smectites sont généralement des phyllosilicates caractérisés par des empilements de feuillets (ou couches) de silicates ou d'aluminates. Les feuillets des smectites sont composés par un feuillet octaédrique (O) pris en sandwich entre deux unités tétraédriques (T), qui également s'appelle structure TOT (cf. figure 1.9(a)). De fait, l'empilement des feuillets est désordonné. Ce désordre et la faible charge des feuillets facilitent leur écartement et l'adsorption des molécules variées (eau, cations, molécules organiques) dans l'espace inter-foliaire entre feuillets (cf. figure 1.9(b)). En outre, ces feuillets peuvent s'intercaler, régulièrement ou irrégulièrement, avec d'autres feuillets argileux, souvent illitiques. L'ensemble forme des inter-stratifiés (I/S), qui occupent une grande partie de l'argilite³³.

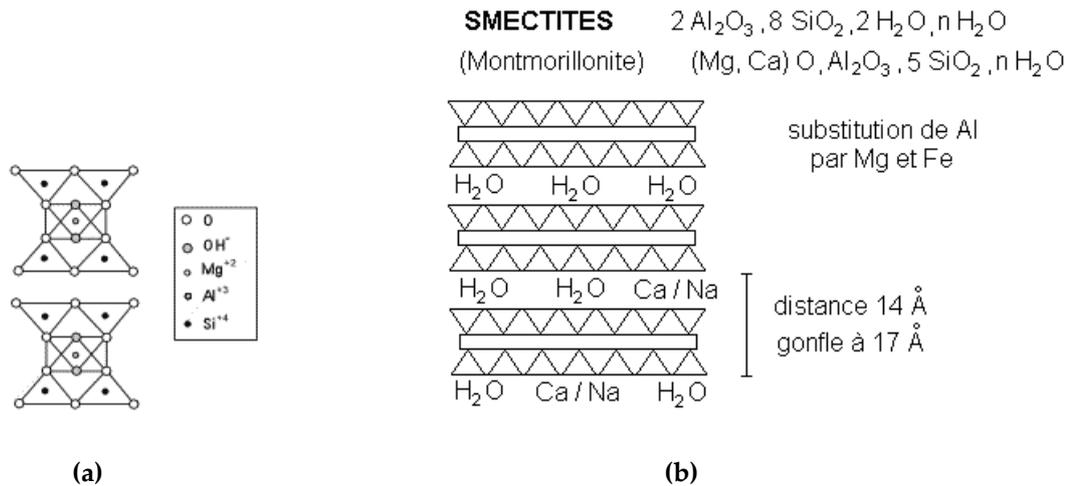


Figure 1.9 - Arrangement atomique de la smectite. (a) TOT structure; (b) La structure de la smectite (ou montmorillonite).

1.1.4.2 La propriété de gonflement anisotrope

Le gonflement anisotrope de l'argilite est une conséquence de la structure anisotrope de ce matériau. Cette propriété a été largement documentée dans les publications scientifiques. Carrier et al³⁴ ont mesuré le gonflement, induit par l'humidité, de films minces de Ca-smectite en utilisant une combinaison de Microscopie Electronique à Balayage Environnemental (SEM) et de Corrélation d'image Numérique (DIC) (cf. figure 1.10(a)). Nous pouvons observer qu'il y a un gonflement orthogonal au film. Les déformations dans les deux directions, transversale et longitudinale, sont montrées dans la figure 1.10(b). Nous observons que les déformations augmentent avec l'augmentation de l'humidité relative, c'est-à-dire avec la teneur en eau. La déformation anisotrope apparaît clairement, les déformations longitudinales sont d'un ordre de grandeur plus petit que les déformations transversales. Wang et al¹⁴ et Yang et al³⁵ ont utilisé une méthode similaire pour examiner ce gonflement de l'argilite et sont arrivés à la même conclusion.

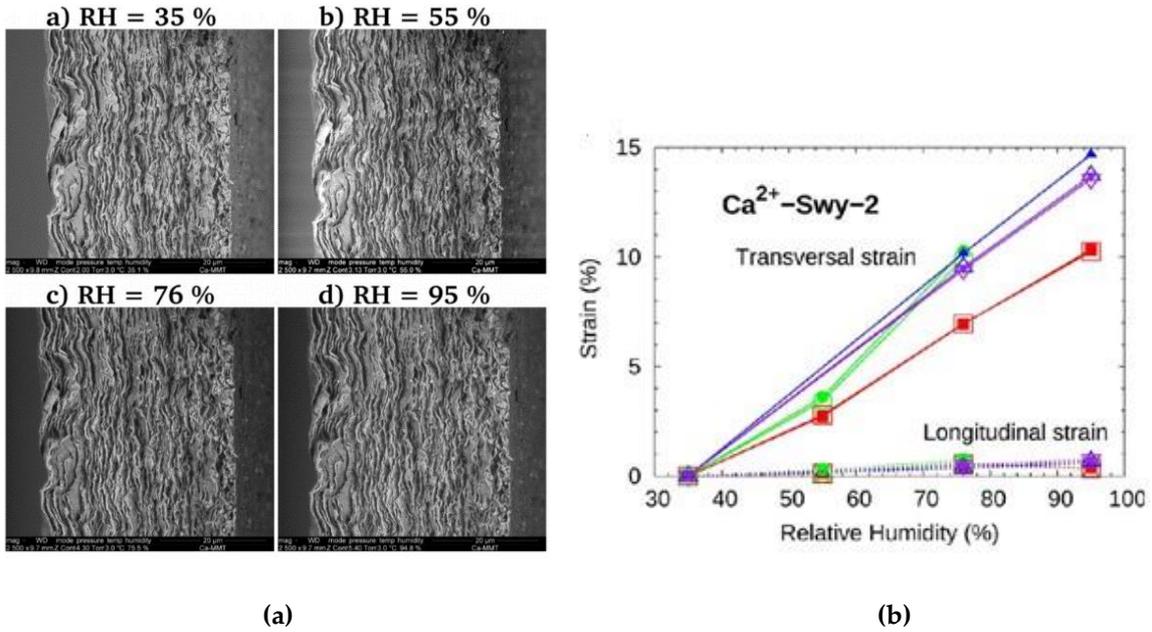


Figure 1.10 - (a) Observation au MEB-E (MEB Environnemental) du bord d'un film de Ca-smectite (au Ca²⁺) à différentes HR; (b) Le déformation transversale et longitudinale de Ca-smectite³⁴.

Guillon et al³⁶ ont effectué une série d'essais de séchage afin d'étudier la réponse hydromécanique (HM) de l'argilite. Les déformations dans les deux directions sont très différentes (cf. figure 1.11). La déformation latérale est deux fois plus importante que la déformation axiale. Pham et al³⁷ ont effectué une série d'essai de désaturation-saturation avec mesure des déformations (cf. figure 1.12). L'anisotropie est nette: la déformation axiale, perpendiculaire au plan de stratification est plus importante que la déformation orthoradiale.

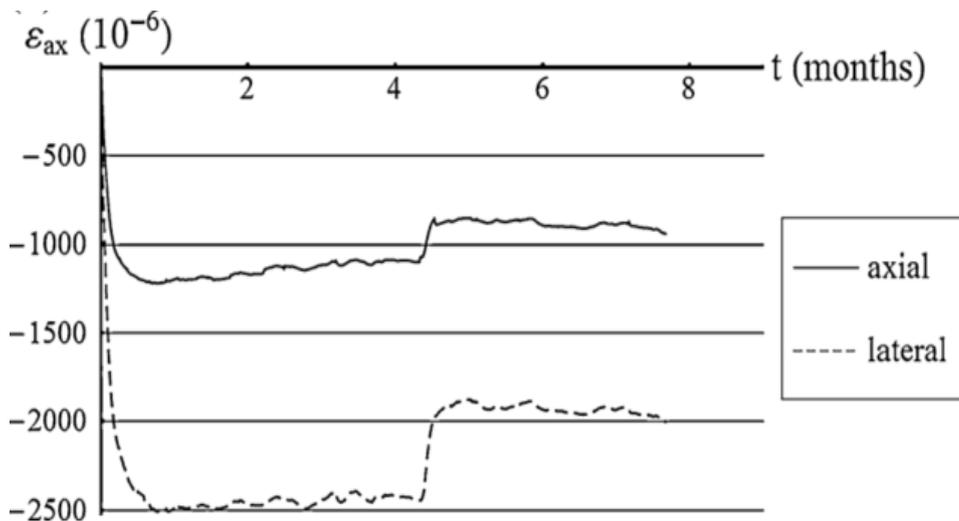


Figure 1.11 - Anisotropie mécanique pendant les deux étapes de l'essai de séchage³⁶

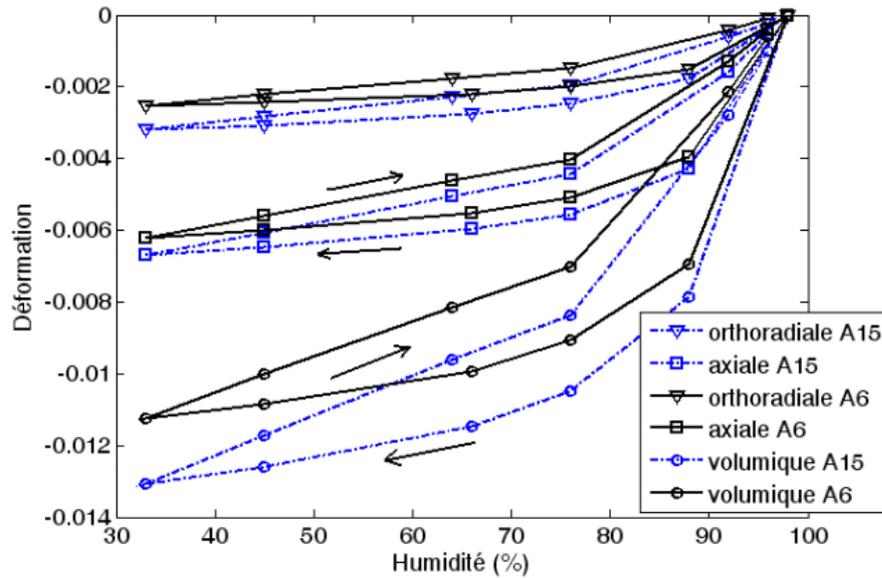


Figure 1.12 - Variation de déformations hydriques par rapport à l'humidité³⁷

1.1.5 Perméabilité au gaz

Sur le long terme, le gaz s'accumule progressivement dans le dépôt suite aux réactions physiques, chimiques et biologiques : avec, par exemple, la désintégration radioactive des déchets, la corrosion des déchets et des containers métalliques, la dégradation des matières organiques et des matériaux cellulosiques^{38, 39}. Ce gaz pourrait circuler dans la roche hôte et s'échapper dans l'environnement naturel. Par conséquent, afin de modéliser ces transferts de gaz, il est nécessaire d'évaluer la perméabilité au gaz de l'argilite. Dans cette section, nous passerons en revue certaines recherches effectuées sur ce sujet.

1.1.5.1 Concepts de base

Généralement, le transfert de gaz dans un réseau poreux est divisé en deux types : la diffusion et l'advection. La diffusion est le processus par lequel la matière est transférée d'une partie d'un système à l'autre, en raison d'une différence de concentration moléculaire. Elle est usuellement décrite par la première loi de Fick:

$$F = -D \cdot \frac{\partial c}{\partial x} \quad (1.1)$$

Avec:

F: le taux de transfert par unité de surface du matériau (en $s^{-1} \cdot m^{-2}$);

D: le coefficient de diffusion (en m^2/s);

C: la concentration de la matière diffusante, X repère l'axe privilégié de la diffusion (en m);

X: l'axe privilégié de la diffusion (en m).

L'advection est liée au transfert de masse sous une différence de pression hydraulique. Elle est usuellement décrite par la loi de Darcy:

$$V = -\frac{K}{\mu} \cdot \text{grad } P \quad (1.2)$$

Avec :

V : La vitesse du fluide (en m/s) ;

K : La perméabilité intrinsèque du matériau (m²) ;

μ : La viscosité dynamique du fluide (Pa. S) ;

P : La pression de fluide (Pa).

Lors du mouvement de gaz, les deux types de transfert coexistent simultanément. Dans les milieux poreux usuels (roches, bétons) le mode de transfert sous gradient de pression est dominé par l'advection et le flux de diffusif est souvent négligé. Ce n'est plus le cas pour des milieux très peu perméables (époxy, silicones...). Pour l'argilite on se contente principalement de la loi de Darcy pour évaluer la perméabilité au gaz.

1.1.5.2 L'effet Klinkenberg

Lorsque le gaz s'écoule dans les micro (voire méso) pores, la viscosité n'est plus le seul paramètre qui entraîne l'écoulement. Lorsque le libre parcours moyen des molécules de gaz et le rayon poreux sont du même ordre de grandeur (faible pression de gaz ou petits pores), les molécules du gaz peuvent glisser sur la paroi des pores. Ce phénomène est appelé effet Klinkenberg traduisant que la vitesse du gaz s'écoulant sur la paroi des pores n'est pas nulle. L'écoulement de gaz se compose alors d'un l'écoulement de glissement et d'un écoulement visqueux (cf. figure 1.13).

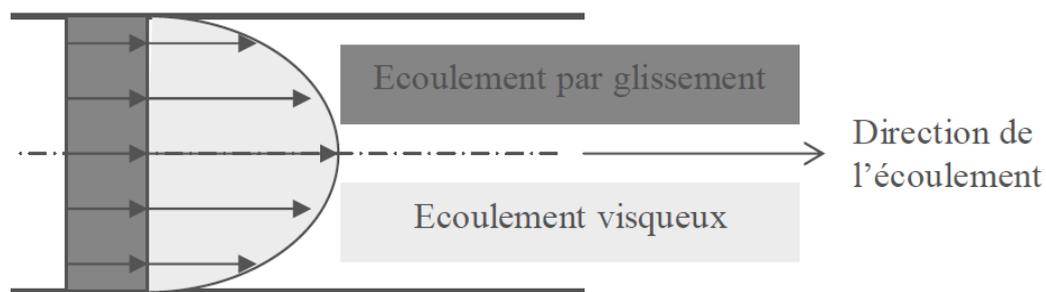


Figure 1.13 - Schéma de vitesses d'un gaz dans un tube capillaire⁴⁰

En pratique, la perméabilité mesurée en laboratoire est la perméabilité apparente K_{app} , qui est différente de la perméabilité intrinsèque K_{int} . K_{app} dépend de la pression d'injection de gaz, mais K_{int} est un paramètre permanent du milieu poreux. Pour décrire la relation entre K_{app} et K_{int} , une équation a été développée par Klinkenberg en 1941, qui s'écrit⁴¹ :

$$K_{app} = K_{int} \left(1 + \frac{\beta}{P_{mean}} \right) \quad (1.3)$$

P_{mean} est la pression moyenne d'injection; β est le coefficient de Klinkenberg, qui dépend des propriétés du fluide (par exemple la viscosité cinématique et le poids moléculaire) et des propriétés du milieu poreux (par exemple la largeur de la gorge des pores)⁴². Ces propriétés étant difficiles à déterminer et à relier à β , on ne peut pas obtenir ce coefficient directement. On préfère donc le mesurer expérimentalement en reliant de $1/P_{mean}$ et K_{app} ^{43, 44}.

Chen et al⁴³ ont vérifié l'effet Klinkenberg pour l'hélium et l'argon dans des échantillons de béton séchés respectivement à 60°C et 105°C (cf. figure 1.14(a)). Les résultats montrent que l'effet Klinkenberg mesuré par l'hélium est plus marqué que celui mesuré par l'argon. Pei⁴⁵ a effectué les essais de perméabilité au gaz sur des échantillons de mortier traités à 105, 400 et 500 °C (cf. figure 1.14(b)). Les résultats montrent que ce coefficient diminue nettement avec l'intensité du chauffage ce qui peut se traduire par une augmentation de la taille moyenne des pores due à la création de « grosses » fissures et/ou leur élargissement dû au départ d'eau des hydrates entraînant leur rétractation. En parallèle, l'augmentation de la pression de confinement entraîne une augmentation du coefficient en raison du resserrement des fissures.

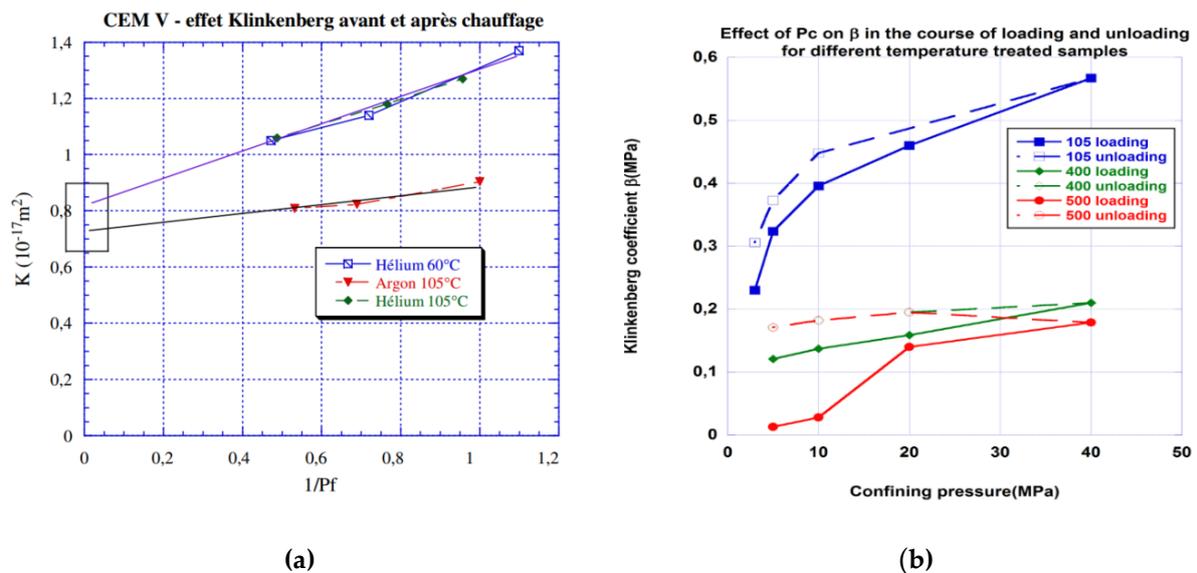


Figure 1.14 - (a) Influence de la pression de gaz statique $(1/P_f) = (1/P_{mean})$ sur la perméabilité effective au gaz pour un béton⁴³; (b) Influence du confinement en cours de charge-décharge sur les mortiers traités dans la température différente⁴⁵.

1.1.5.3 Etat de l'art sur la perméabilité au gaz de l'argilite

Il y a eu de nombreuses études, notamment dans notre laboratoire, sur la perméabilité au gaz de l'argilite. Sur la base de la thèse de Sofia M'Jahad²⁴, on continue à mener de nouvelles recherches sur cette sujet, comme le montre -le tableau 1.1. On peut noter qu'il y a une grande variabilité des résultats de perméabilité au gaz car elle dépend de l'état du matériau, celle mesurée sur des matériaux fissurés est plus grande que celle mesurée par les matériaux initiaux. Elle varie aussi avec la teneur en eau, voir la figure 1.15. Globalement, la perméabilité

au gaz de l'argilite est très faible, ce qui signifie que cette roche a une bonne capacité d'étanchéité à long terme.

Tableau 1.1 - Les perméabilités au gaz mesurées en littérature sur l'argilite du CO_x

Références	Etat du matériau	Gaz	Ordre de grandeur de K (m ²)	Taille d'échantillon (mm)	
				Diamètre	Longueur
Zhang et al(2004) ⁴⁶	Intact	Azote	$K_{eff.//} 10^{-17}-10^{-21}$ $K_{eff._ } 10^{-19}-10^{-21}$	40	80
Davy et al (2007) ⁴⁷	Fracturée	Argon	$K_{eff.} 10^{-14}$	37	70
Skoczylas (2010) ⁴⁸	Humides et secs	Argon	$K_{eff.} 10^{-18}-10^{-21}$ $K_{sec.} 10^{-18}-10^{-19}$	37	10
M'Jahad (2012) ²⁴	Fortement fissuré	Argon	$K_{eff.} 10^{-17}-10^{-18}$	37	10
	Intact		$K_{eff.} 10^{-19}-10^{-20}$		
	Micro-fissuré		$K_{eff.} 10^{-18}-10^{-19}$		
-Song (2014) ²⁹	Libre	Argon	$K_{eff.} 10^{-16}-10^{-22}$	37	10
	Bloqué		$K_{eff.} 10^{-16}-10^{-22}$		

(Note: // représente la direction parallèle – à la stratification, _|_ représente la direction perpendiculaire à la stratification).

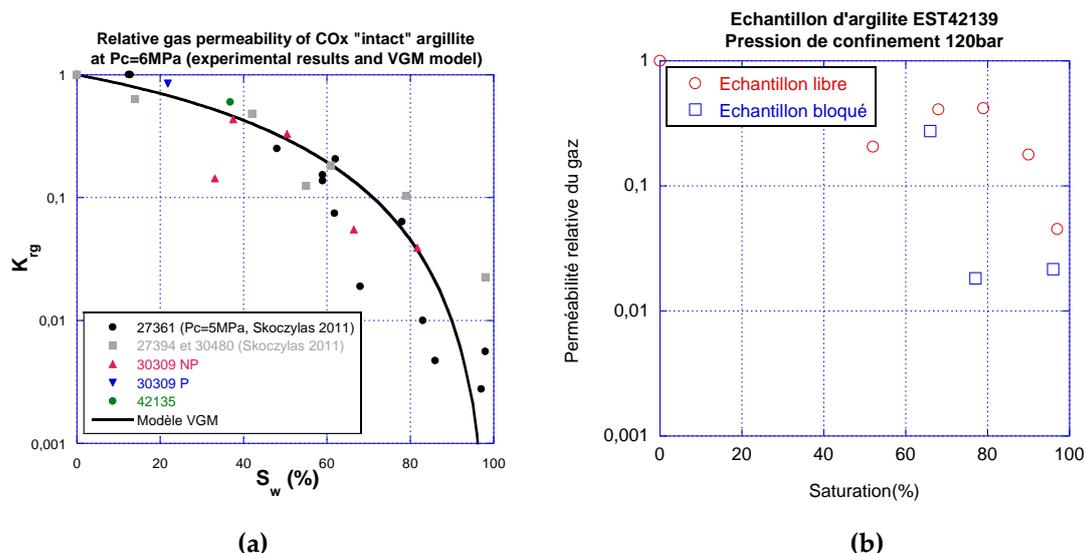


Figure 1.15 - (a) La perméabilité relative de l'échantillons « intact »²⁴; (b) La perméabilité relative de l'échantillon libre et bloqué²⁹.

1.1.6 Perméabilité à l'eau

Théoriquement, la perméabilité est une propriété intrinsèque au milieu poreux la condition reste néanmoins que le fluide injecté soit non réactif avec ce milieu. Ce n'est évidemment pas le cas pour l'argilite à causes des interactions entre l'eau et les minéraux argileux (principalement avec la smectite). Ces interactions peuvent provoquer le gonflement des minéraux et donc rendre les pores plus étroits. Par conséquent, la perméabilité à l'eau est

plus faible que la perméabilité au gaz. En fait, cette différence a déjà été identifiée par de nombreux auteurs. En analysant les tableau 1.1 et tableau 1.2, on voit que la perméabilité au gaz de l'argilite varie à grande échelle, de 10^{-16} à $10^{-22}m^2$, en raison de l'augmentation de la teneur en eau et de la fissuration. La perméabilité à l'eau de l'argilite saturée varie de 10^{-20} à $10^{-21}m^2$. Cela signifie qu'il faut miser sur le long terme pour obtenir la resaturation des roches argileuses après la fermeture du dépôt, et obtenir une migration lente des gaz qui sortent des déchets dans l'argilite s'effectue lentement produits. Globalement, dans le laboratoire, de nombreuses études ont été menées sur la perméabilité à l'eau, mais l'eau utilisée dans les essais fut souvent de l'eau pure donc différente du cas in-situ. Nous avons utilisé l'eau de site afin de mesurer, dans cette étude, la perméabilité à l'eau dans des conditions plus proches de la situation in-situ, ce qui devrait permettre à l'Andra de comparer nos essais et ceux conduits in-situ.

Tableau 1.2 - La perméabilité à l'eau mesuré de l'argilite du COx dans les littératures

Références	Etat du matériau	Type de l'eau	Ordre de grandeur de K (m ²)	Taille (mm)	
				Diamètre	Longueur
Escoffier et al (2005) ⁴⁹	Intact	Eau synthétique	5×10^{-20} - 5×10^{-21}	15	38
Davy et al (2007) ⁴⁷	Fracturée	L'eau pure	10^{-18} - 10^{-21}	37	70
M'Jahad (2012) ²⁴	Intact	L'eau de site	10^{-20} - 10^{-21}	37	10
Song (2014) ²⁹	Intact	L'eau pure	10^{-20} - 10^{-21}	37	10

1.2 Rappels sur les études du coefficient de Biot de l'argilite

Dans le contexte de la théorie de la poroélasticité, un matériau poreux est composé par la matrice et l'espace poreux connecté. La matrice est constituée des grains solides et de porosité non-connectée. Le fluide (gaz et liquide), traversant le matériau peut former un milieu continu dans l'espace poreux connecté (cf. figure 1.16)⁵⁰. A l'échelle macroscopique, nous pouvons décrire le comportement du milieu poreux en adaptant les outils classiques de la thermodynamique des milieux continus. A l'échelle microscopique, on peut étudier les effets du couplage de thermique-hydro-mécanique-chimique (*THMC coupling*) entre les phases composant le milieu poreux. Elle permet entre autre de caractériser le comportement global du milieu en tenant compte des phénomènes microscopiques par des prises de moyenne des champs locaux. Il y a plusieurs modèles mécaniques à l'échelle macroscopique pour étudier le comportement du milieu poreux, mais la majorité des modèles sont basés sur la théorie de Biot qui (en milieu isotrope) a mis en évidence le coefficient dit « de Biot » qui est l'élément clef dans la théorie. Pour mieux comprendre les propriétés poromécaniques de l'argilite en

conditions *HM coupling* et *THM coupling*, nous avons centré une bonne partie de l'étude sur le coefficient de Biot.

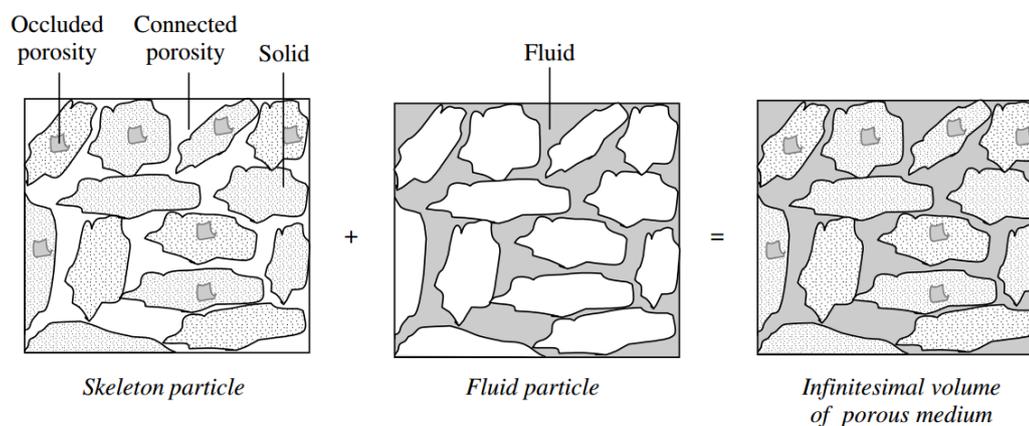


Figure 1.16 - Milieu poreux considéré comme la superposition de deux milieux continus : un squelette de particules solides et un fluide réunis dans le même volume poreux⁵⁰

1.2.1 Loi de la contrainte effective

La loi de la contrainte effective a été écrite par Terzaghi⁵¹, fondateur de la mécanique des sols modernes, en 1925. C'est une théorie « classique » et reconnue en mécanique des sols et des sables. Afin de commémorer sa contribution à la mécanique des sols, la conférence « Karl Terzaghi Lecture » a lieu une fois par an depuis 1960. Cette théorie suppose que les grains solides du matériau sont incompressibles devant le squelette formé par l'ensemble, et que la pression interstitielle est uniforme. En chargement de confinement, la contrainte effective est définie par :

$$\sigma_{eff} = \sigma - P_p \quad (1.4)$$

où σ_{eff} est la contrainte effective imposée au milieu poreux; σ est la pression hydrostatique; P_p la pression interstitielle.

Si on peut ignorer la compression des grains dans un sol, la situation est différente pour les roches. La matrice solide de celles-ci a parfois une compressibilité du même ordre de grandeur que le squelette. Cela signifie que on ne peut pas calculer la contrainte effective par la théorie « Terzaghi ». Pour prendre en compte l'effet de la pression interstitielle sur la contrainte effective, Biot a utilisé une approche thermodynamique faisant apparaître un coefficient b , appelé le coefficient de Biot, permettant de calculer la contrainte effective⁵², définie par:

$$\sigma_{eff} = \sigma - bP_p \quad (1.5)$$

Cette théorie est la base de la poromécanique et est largement utilisée dans les grands projets, comme l'ingénierie pétrolière, la séquestration géologique du CO₂ et le stockage

souterrain de déchets nucléaires. Afin de commémorer la contribution de Biot à la mécanique des milieux poreux, la conférence « *Biot conference* » se tient tous les 3 à 4 ans depuis 1998.

1.2.2 Etat de l'art sur le coefficient de Biot de l'argilite

Dans le cas d'un milieu isotrope transverse ou orthotrope, on doit faire intervenir le tenseur de Biot qui est diagonal dans le repère de structure. Diverses recherches expérimentales ont été effectuées pour mesurer les composantes du tenseur de Biot (ou du coefficient de Biot) pour différents milieux poreux, y compris le calcaire^{53, 54}, le grès^{55, 56}, le mortier^{57, 58} et le béton⁵⁹, etc. Ces matériaux sont « relativement faciles » à étudier, car leurs pores sont généralement de grande taille et leur perméabilité est assez élevée. En conséquence, la pression de pore dans ces matériaux peut être contrôlée sans difficulté majeure. Cependant, malgré sa forte porosité, une moyenne de $18\% \pm 4\%$, le cas de l'argilite est très différent. Comme ses pores sont très petits et sa perméabilité à l'eau faible, cela nécessite un effort considérable pour atteindre un état homogène de saturation et de distribution de la pression de pore. En termes expérimentaux, à chaque fois qu'un état de pression de pore homogène est requis, et que l'eau est utilisée comme fluide injecté, alors toute étape d'une expérience poromécanique sur l'argilite devient une procédure longue. De plus, la smectite dans l'argilite peut subir un gonflement et affecter la mesure du coefficient de Biot. Pour cette raison, seul un petit nombre d'études expérimentales peuvent être trouvées sur les mesures du tenseur de Biot pour l'argilite. Escofier et al⁶⁰ ont considéré le tenseur de Biot comme une propriété isotrope, c'est-à-dire pouvant être représentée par le coefficient de Biot. Ils ont utilisé une cellule œdométrique pour effectuer des mesures directes sur un échantillon saturé, les résultats expérimentaux varient entre 0.52 et 0.95. Ces valeurs dispersées peuvent être la conséquence d'une saturation incomplète de l'argilite: l'échantillon utilisé pour l'essai poromécanique peut rester partiellement saturé pendant l'essai. Homand et al⁴⁹ ont également considéré le tenseur de Biot de l'argilite comme étant un scalaire et obtenu ce coefficient (environ 0.75) à partir de plusieurs calculs inverses. Comme ce type de mesure indirecte nécessite l'utilisation de nombreux paramètres, les erreurs combinées peuvent facilement entraîner des inexactitudes dans la valeur finale du coefficient de Biot. Belmokhtar et al⁶¹ ont récemment utilisé de l'eau comme fluide injecté pour saturer l'échantillon de l'argilite, ils ont effectué une série d'essais pour obtenir des propriétés poroélastiques et des composantes du tenseur Biot. Il a conclu que le coefficient b_2 de Biot (dans le plan des strates) est changé de 0.90 à 0.98, b_1 (perpendiculaire aux strates) est changé de 0.85 à 0.87 (Tableau 1.3).

De là, compte tenu des difficultés de l'utilisation de l'eau en tant que fluide injecté, notre laboratoire a mis en œuvre une nouvelle méthode expérimentale utilisant du gaz, au lieu de l'eau, comme fluide interstitiel pour mesurer le coefficient de Biot. Cariou et al⁶² ont constaté que le coefficient de Biot de l'argilite partiellement saturée d'eau était proche de 1. Cependant, comme il ne s'agissait pas d'une étude exhaustive, une nouvelle campagne expérimentale plus complète a été développée dans le cadre de notre travail, afin de mesurer avec précision les

composantes du tenseur de Biot pour l'argilite sous différentes conditions de saturation en eau. Des valeurs jugées « illogiques », car supérieures à 1, ont été observées sur échantillon sec par Cariou. Ceci a également été mis en évidence par François Bignonnet sur un autre type de roche argileuse là aussi à l'état sec⁶³. Il est connu que l'effet des microfissures, en augmentant la fragmentation du matériau, induit une augmentation du coefficient de Biot, mais selon la théorie de la poroélasticité, ce coefficient ne peut jamais être supérieur à l'unité (1,0). Notre étude s'est alors en partie consacrée à ce phénomène pour le comprendre et l'expliquer.

Tableau 1.3 - Calcul de b_1 et b_2 pour différents ν_{12}

ν_{12}	EST31912c ($\sigma_d=10\text{MPa}$)		EST31912e ($\sigma_d=8\text{MPa}$)	
	b_1	b_2	b_1	b_2
0,25	0,836	0,906	0,854	0,996
0,30	0,845	0,896	0,870	0,976
0,35	0,852	0,888	0,884	0,959

1.3 Le gonflement induit par l'adsorption dans les roches argileuses

1.3.1 Le phénomène d'adsorption

Le phénomène d'adsorption provient des interactions moléculaires entre un solide et un fluide, qui modifie l'état du fluide au voisinage du solide. Ce phénomène inclut les interactions fluide-fluide et fluide-solide, mais il devient significatif lorsque les interactions entre les molécules du fluide et les molécules du solide sont fortes. La figure 1.17 schématise ce phénomène. Les molécules fluides peuvent être adsorbées à la surface d'un solide, mais également à l'intérieur d'un solide poreux. Selon les types de forces intervenant dans les liaisons entre l'adsorbat et la surface, le phénomène d'adsorption peut être classé en deux catégories: l'adsorption chimique si les molécules de fluide adsorbées forment une liaison chimique avec le squelette solide, et la physisorption qui implique des interactions entre ions ou entre ions et dipôles. Usuellement on estime que les quantités de molécules adsorbées à la surface du solide dépendent de cinq facteurs: la surface spécifique du matériau, la structure moléculaire de la surface, le type du fluide, la pression du fluide et la température⁶⁴⁻⁶⁶.

1.3.2 Le mécanisme du gonflement induit par adsorption

En fait, l'adsorption de fluide est souvent suivie d'une déformation de gonflement dans les milieux poreux. Par exemple, le charbon gonfle en présence de l'adsorption de dioxyde de carbone, l'argilite gonfle en présence de l'adsorption d'eau, etc. On s'appelle cette déformation adsorption-gonflement. Cette déformation peut changer la structure du matériau de l'échelle moléculaire à l'échelle macroscopique. De plus, elle aura une influence significative sur les propriétés de transfert (porosité et perméabilité, etc.) et les propriétés mécaniques du matériau. Afin de comprendre ces influences, nous devons étudier ce mécanisme plus en détail.

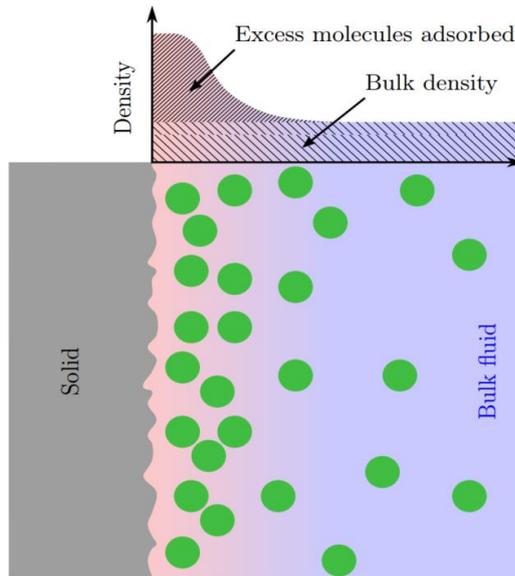


Figure 1.17 - Le schéma du phénomène d'adsorption⁶⁷

Généralement, lorsque la taille des pores dans un matériau est de l'ordre de la gamme des interactions moléculaires, les molécules peuvent être adsorbées sur les parois des pores. Ces matériaux sont communément appelés microporeux (la taille des pores est inférieure à 2nm) selon la classification IUPAC des matériaux (cf. figure 1.18). Pour plus de clarté, nous allons nous référer à ces matériaux comme étant des matériaux nanoporeux, lorsque la taille des molécules fluides et de leur interaction est de l'ordre de cette taille (≈ 1 nm). En fait, les roches argileuses, comme l'argilite, le schiste argileux, contiennent des pores multi-échelles, de macro à nano. Ils contiennent aussi des macrofissures et des microfissures dues à des facteurs externes ou internes. L'abondance des micro et nano-pores dans les roches argileuses, développent une grande surface spécifique telle que la quantité de fluide adsorbé soit significative sur le squelette solide.

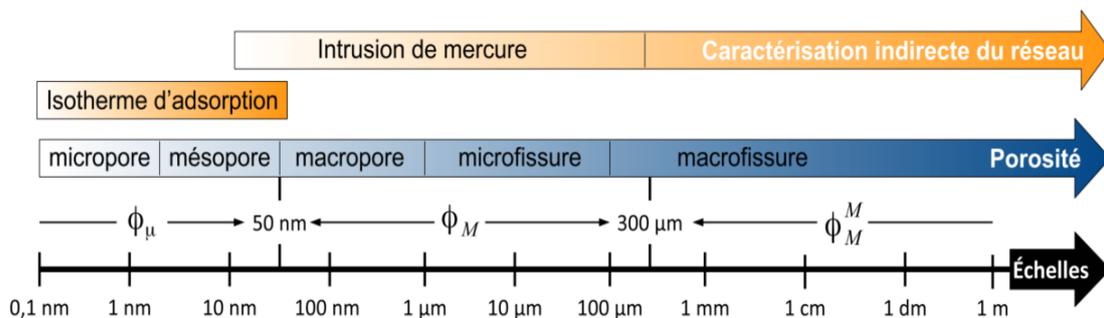


Figure 1.18 - Classement des pores selon l'IUPAC⁶⁷

Comme nous l'avons déjà signalé, le squelette solide des roches argileuses est composé d'illite, kaolinite, chlorite et smectite, etc. La smectite est un minéral qui a une forte capacité de gonflement. Lorsque le fluide adsorbable s'écoule dans l'espace poreux, il peut être absorbé

sur la surface du squelette solide. S'il était empêché le gonflement de la smectite due aux interactions fluides-solides, induirait une pression appelée pression de gonflement. Ce gonflement de la smectite génère une déformation à l'échelle macroscopique.

A l'échelle moléculaire, le mécanisme du gonflement induit par adsorption est illustré dans la figure 1.19. La distance entre les feuillets de smectite augmente avec la pression de gonflement. Si à cette pression s'ajoute la pression des pores, il pourrait s'ensuivre une diminution supplémentaire de la contrainte effective.

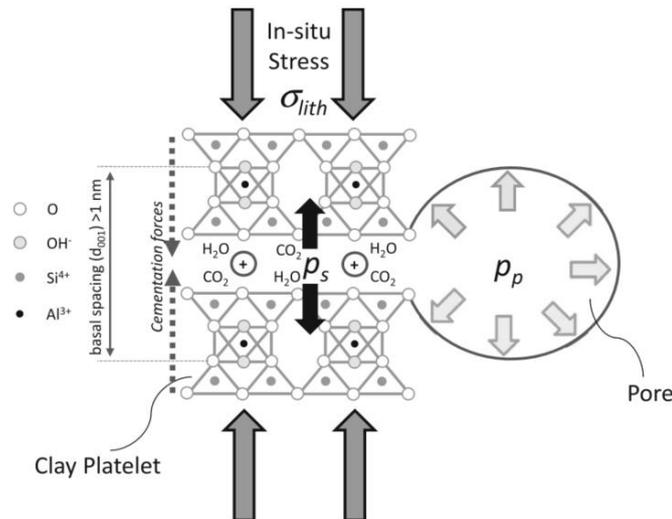


Figure 1.19 - Illustration schématique du gonflement induit par l'adsorption à l'échelle moléculaire⁶⁸

1.3.3 Etat de l'art sur le gonflement induit par l'adsorption de gaz dans les roches argileuses

Le phénomène du gonflement induit par l'adsorption de gaz est très connu dans l'ingénierie pétrolière, la production de gaz de schiste, la séquestration géologique du dioxyde de carbone. Chen et al⁶⁹ ont montré que la déformation de l'adsorption-gonflement des échantillons de schiste est plus grande avec du méthane (gaz adsorbable) qu'avec l'hélium (gaz non-adsorbable) (cf. figure 1.20(a)). Lu et al⁷⁰ ont effectué une série d'essais pour étudier l'effet de la température et la pression du CO₂ sur la déformation du schiste, les résultats ont montré que le gonflement diminue avec l'augmentation de la température (cf. figure 1.20(b)). Le gonflement augmente initialement et ensuite diminue avec l'augmentation de la pression du gaz, phénomène attribué au changement de l'état du gaz dans ce processus. Song et al⁷¹ ont trouvé que l'adsorption de gaz peut affecter la perméabilité apparente de schiste, en raison du gonflement des micropores qui réduit l'espace pour le transfert de gaz. Les mêmes résultats sont observés par Li et al⁷², Wang et al⁷³. Le gonflement induit par l'adsorption de gaz est en parallèle observé sur l'argile de Boom⁷⁴, sélectionnée comme roche hôte pour l'élimination des déchets nucléaires en Belgique. Par conséquent, compte tenu de sa structure multi-poreuses et de sa composition minérale, l'argilite devrait vraisemblablement posséder une capacité de gonflement lorsqu'un gaz adsorbable est injecté.

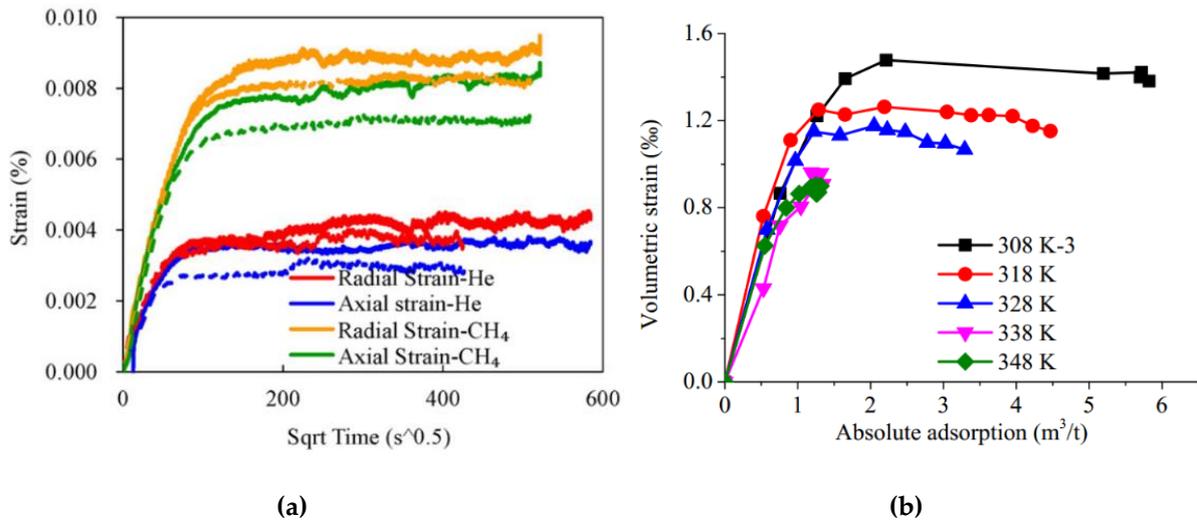


Figure 1.20 - (a) L'évolution de la déformation pendant l'injection de gaz ; (b) Relation entre la quantité adsorbée et le gonflement des schistes induits par le CO₂

1.4 L'effet de la température sur l'argilite du CO_x

La décomposition des déchets nucléaires HA-MAVL étant un processus exothermique, ceci va conduire à une augmentation de la température de la roche hôte. Cette variation -peut affecter le comportement de l'argilite. La plus grande préoccupation est de savoir dans quelle mesure les propriétés de barrière étanche de cette roche seront, sur le long terme, modifiées à des températures maximum de 90°C^{1, 75}. Comme nous le savons, la roche hôte autour de la galerie sera progressivement (re)saturée après la fermeture du tunnel. On peut penser qu'il y aura une période transitoire pendant laquelle des zones (exemple dans l'EDZ) resteront partiellement saturées. Il y a donc un champ considérable d'investigations à mener sur les couplages THM prenant en compte la température comme sollicitation mais aussi comme facteur d'influence sur les propriétés du matériau. Par exemple, une forte augmentation de température va influencer sur la pression de l'eau interne qui par couplage peut conduire jusqu'au claquage de la roche. Il y a cependant un effet compétitif avec la perméabilité qui pilote la chute plus ou moins rapide de cette surpression ou conditionne son intensité.

De là, des études expérimentales et numériques ont été mises en œuvre in-situ ou en laboratoire, pour simuler ces comportements couplés sur les courts et longs termes.

1.4.1 Essai in-situ sur l'effet thermique

L'Andra a déjà mené deux séries d'essai de chauffage à la profondeur de 490m au niveau de URL. La première série est appelée TER (cf. figure 1.21)²¹. Cette série d'essai a commencé en juillet 2005. La source de chauffage est installée à côté de l'extrémité du forage, et quelques capteurs sont installés afin de mesurer la pression de pore, la déformation, et la température lors du chauffage qui a démarré le 11 Janvier 2006 pour une période de 200 jours. Une autre

phase de chauffage a commencé à la fin de 2006. La figure 1.22 présente l'évolution de la pression interstitielle due à l'augmentation de la température dans la première phase de chauffage. Il montre que la pression interstitielle évolue de manière similaire à la modification de la température due à la dilatation différentielle entre les phases solides et fluide.

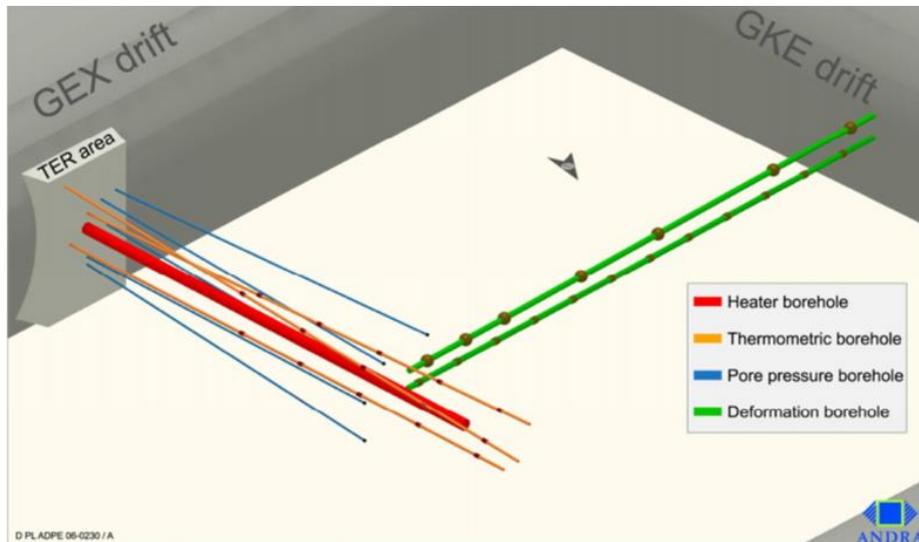


Figure 1.21 - Vue générale 3D de l'essai TER

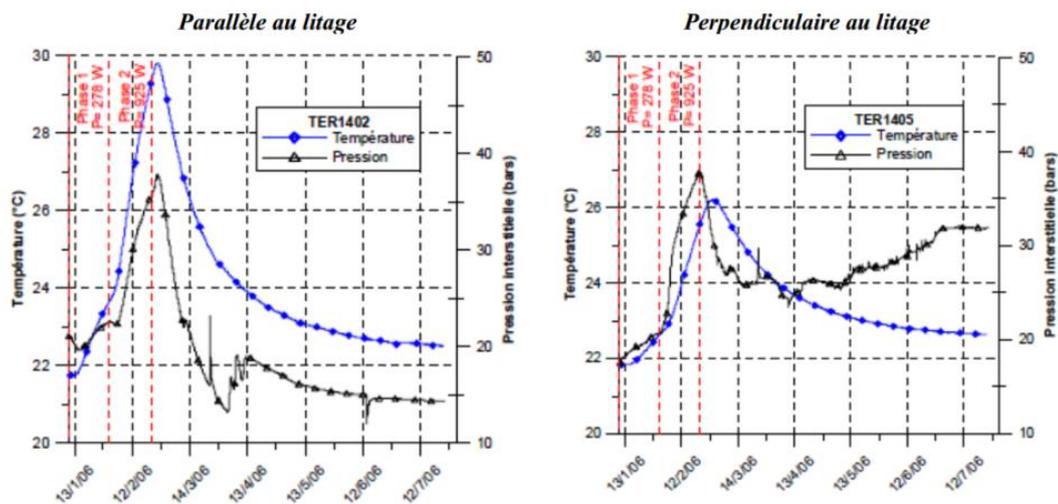


Figure 1.22 - l'évolution de pression interstitielle due à l'augmentation de la température^{1, 21}

Afin de parfaire la compréhension de l'impact thermique sur l'argilite et de faire une comparaison avec les résultats expérimentaux obtenus in-situ, de nombreux chercheurs ont développé des modèles numériques pour simuler le comportement THM du matériau. Jia et al²⁶ ont utilisés une formulation théorique couplée qui intègre un modèle constitutif spécialement développé pour ce matériau qui a donné des résultats numériques assez fidèles aux résultats expérimentaux (cf. figure 1.23).

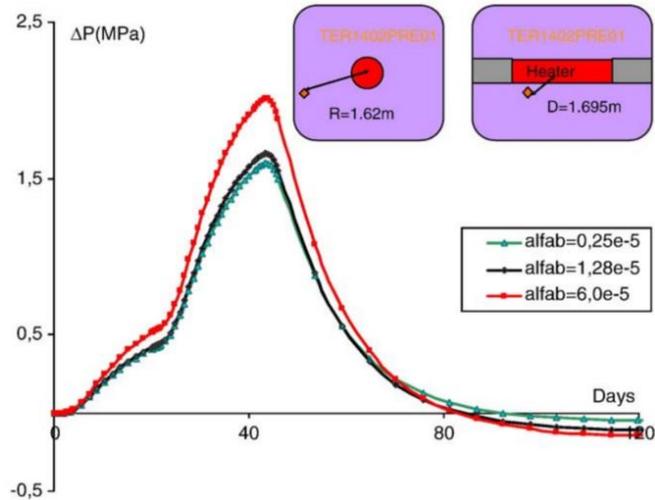


Figure 1.23 - Influence du coefficient de dilatation thermique de la roche sur la pression des pores à l'intérieur de forage TER1402⁷⁶

L'étude du comportement THM de la roche hôte s'est poursuivie par une deux autres essais appelés TEC et TED - menés en permanence in-situ (cf. figure 1.24). La Figure 1.25 présente l'évolution de pression interstitielle due à l'augmentation de la température. Nous pouvons remarquer que la pression interstitielle augmente très rapidement au début de l'augmentation de la température jusqu'à une valeur maximum. Elle diminue ensuite lentement après ce point culminant. Cette diminution est due à la diffusion de la pression interstitielle qui fait partie de l'effet compétitif mentionné auparavant.

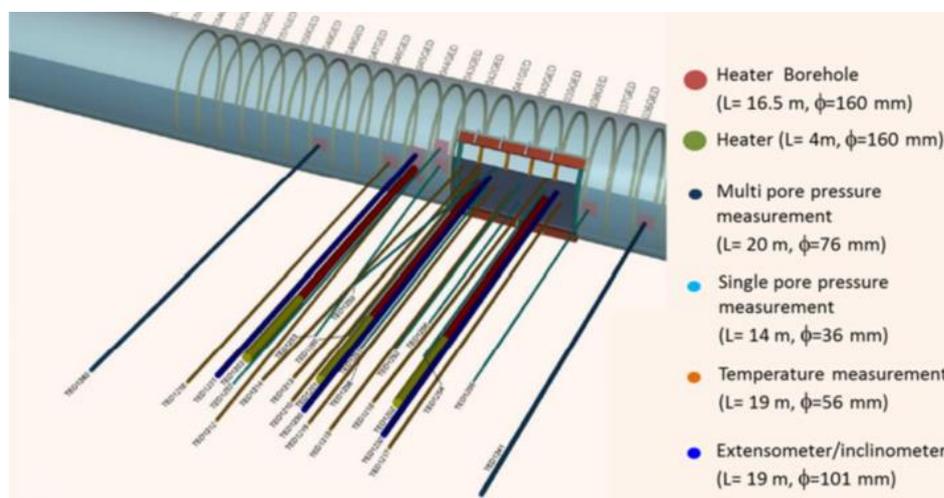


Figure 1.24 - Vue générale 3D des essais TEC et TED⁷⁷

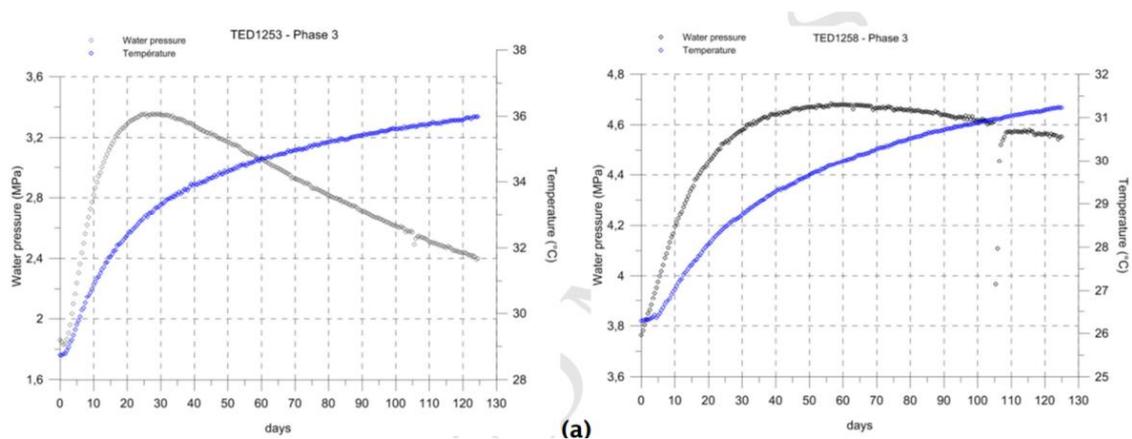


Figure 1.25 - L'évolution de pression interstitielle due à l'augmentation de la température. (a) TED1253 est parallèle au litage; (b) TED1258 est perpendiculaire au litage.⁷⁷

1.4.2 Essai au laboratoire sur l'effet thermique

Les difficultés expérimentales à mener des essais de couplage avec température font qu'il n'y a pas beaucoup d'études sur le comportement THM d'argilite. Zhang et al⁷⁸ ont effectué quelques séries d'essais sur l'effet thermique : expansion et contraction thermique (chauffage et/ou refroidissement), pression d'eau de pore induite thermiquement, influences de la température sur la déformation et la résistance, impacts thermiques sur le gonflement, scellement et perméabilité. Ils ont conclu que ces réponses THM dépendent des propriétés inhérentes au matériau lui-même tels que ses composants minéraux, sa porosité et liées à l'état de celui-ci : saturation en eau, conditions extérieures tels que le confinement, l'intervalle de température, etc.

Théoriquement, sur pression de pore induite par la température n'apparaît que dans les sols et les roches de faible perméabilité en raison du fait que le coefficient de dilatation thermique de l'eau est nettement supérieur à celle du squelette solide. Mohajerani et al⁷⁹ ont étudié la pression de pore induite par la température se produisant dans l'argilite du COx, sur un échantillon resaturé au laboratoire. Cet essai a été réalisé avec une cellule spéciale de compression isotrope. Ils ont trouvé que la pressurisation thermique dépendait d'interactions complexes, comprenant la dilatation thermique des constituants (eau et minéraux) et les conditions de chargement.

Hamza et al⁷⁵ ont mis en œuvre un nouvel essai en cellule triaxiale sur cylindre creux, spécialement développée pour les matériaux à faible perméabilité, et destinée à l'étude du comportement TM de l'argilite saturée. Ils ont effectué des essais de cisaillement drainés à 25°C, des essais de chauffage drainés de 25°C à 80°C sous différents confinements et pressions de pore et des essais de perméabilité à l'eau. Les résultats montrent peu d'effet de la température sur les propriétés élastiques mais une diminution de la résistance au cisaillement a été notée conformément aux quelques données publiées disponibles. La température semblait également avoir peu d'effet sur la perméabilité intrinsèque, avec des débits plus élevés principalement en raison de la diminution de la viscosité de l'eau.

Chapitre 2 Mesure du coefficient de Biot de l'argilite partiellement saturée

2.1 Introduction

L'argilite du COx en tant que roche abritant des déchets radioactifs sera soumise à des cycles de séchage-imbibition dus à l'excavation, la ventilation et l'activité thermique propre de ces déchets. La construction des tunnels va provoquer dans la roche des changements d'états de contrainte et de saturation; tous auront un effet sur la structure poreuse et sur l'apparition de zones plus ou moins fissurées. L'ensemble de ces sollicitations doit être soigneusement étudié dans le cadre de la sûreté des installations. Parmi elles, les influences de l'humidité relative, du confinement et de la pression de pore sur le comportement poromécanique doivent être l'objet d'une attention particulière. Ce chapitre étudie certaines propriétés poromécaniques (coefficient de Biot et couplage déformation-pression de fluide) de l'argilite dans des conditions sèches et partiellement saturées. Cette étude est une poursuite d'une partie des travaux de thèse de Sophie Cariou⁵. Une technique de mesure du coefficient de Biot par injection de gaz est utilisée dans cette étude.

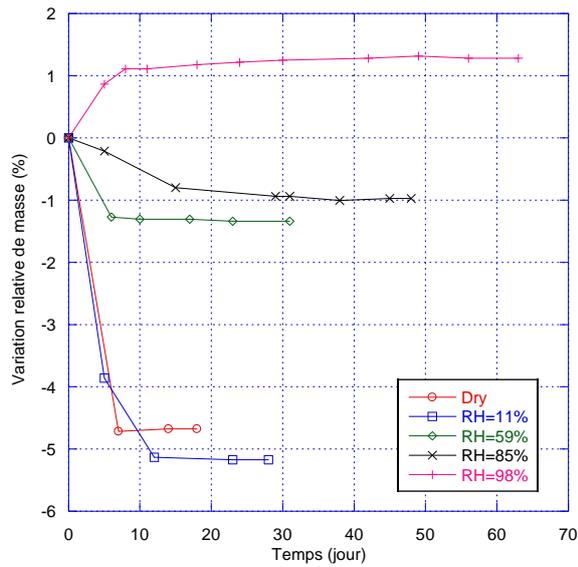
Ce chapitre est divisé en trois parties. La première consiste à étudier l'influence de la pression d'injection de gaz sur la mesure du coefficient de Biot, tous les essais ont été effectués avec l'échantillon de la cellule T1 EST51335. La deuxième partie consiste à étudier l'influence du confinement sur la mesure du coefficient de Biot, tous les essais ont été effectués avec l'échantillon de la cellule T1 EST51446. La troisième et dernière partie consiste à discuter des valeurs des composantes du tenseur de Biot mesurées dans les deux parties précédentes. Un autre test préliminaire pour identifier les résultats issus d'essais antérieurs a également été réalisé et est présenté dans cette dernière partie.

2.2 Préparation des échantillons

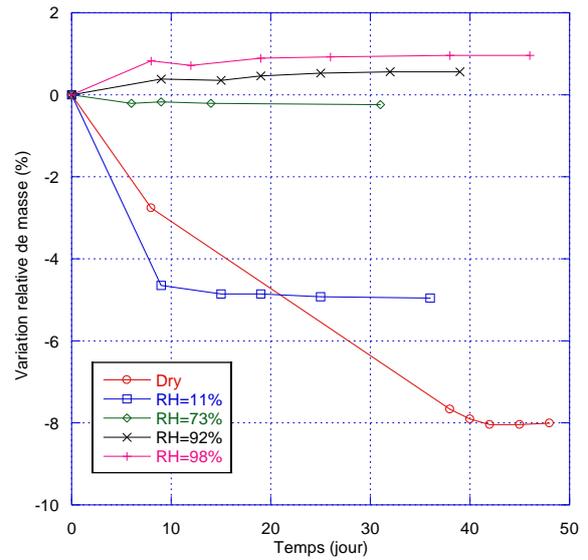
Pour ne pas avoir des temps trop longs d'équilibre de pression interne, nous avons choisi de tester des échantillons cylindriques de 20 mm de diamètre et de 40 mm de hauteur. Cette taille satisfait au ratio usuel d'élançement de 2 -recommandé pour éviter les effets de bord-. Les éprouvettes sont rectifiées pour avoir un parallélisme des surfaces inférieur à 0.05 mm. Les caractéristiques principales des échantillons testés sont présentées dans le Tableau 2.1. Après carottage, chaque échantillon est placé en étuve ou dans une cloche à humidité relative donnée, de plus, la masse de chaque échantillon est suivie régulièrement jusqu'à stabilisation (cf. figure 2.1). 2 couples de croix formées de deux jauges sont collés au milieu de l'échantillon, elles permettent de mesurer au même point la déformation axiale et la déformation latérale, leur longueur est de 5mm (schéma figure 2). On a donc deux jauges longitudinales (axes 1 ou 2) et deux jauges transversales (axe n).

Tableau 2.1 - Caractéristiques principales des échantillons testés

Carotte	Orientation	Condition de traitement	Référence échantillon	Dimensions		Masse initiale (g)	Mass du stable (g)	Taux de variation de masse(%)
				Diamètre (mm)	Hauteur (mm)			
EST51335	Horizontale	60 °C étuve	YHF-11	19.62	40,23	28,64	27.30	-4.679%
		HR = 11 % cloche	YHF-13	19.56	42,20	29,02	27.52	-5.169%
		HR = 59 % cloche	YHF-12	19.54	40,31	28,36	27.98	-1.340%
		HR = 85 % cloche	YHF-3	19.59	40,20	28,79	28.51	-0.973%
		HR = 98 % cloche	YHF-8	19.61	40.29	28.81	29.18	1.284%
EST51446	Horizontale	60 °C étuve	YHF-25	19.80	41.00	29.35	27.00	-8.001%
		HR = 11 % cloche	YHF-31	19.39	40.68	28.84	27.41	-4.958%
		HR = 73 % cloche	YHF-29	19.38	40.81	28.78	28.71	-0.243%
		HR = 92 % cloche	YHF-32	19.48	41.47	28.45	28.61	0.562%
		HR = 98 % cloche	YHF-19	19.36	42.03	29.19	29.47	0.959%



(a) EST51335



(b) EST51446

Figure 2.1 - Rappel des variations relatives de masse pour les échantillons issus de la cellule T1. (a) EST51335 ; (b) EST51446

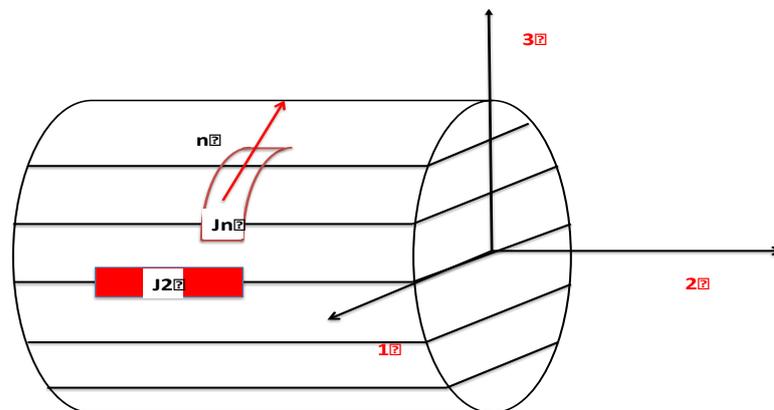


Figure 2.2 - Instrumentation par jauge

Les déformations ($\varepsilon_1, \varepsilon_2, \varepsilon_3, \varepsilon_4$) sont mesurées par un système d'extensométrie TML ou National Instruments (LabView), chacun ayant une précision de $\pm 10^{-6}$ m/m.

Les déformations ($\varepsilon_1, \varepsilon_2, \varepsilon_3, \varepsilon_4$) sont mesurées par un système d'extensomètre TML ou LabView donnant chacun une précision de $\pm 10^{-6}$ m/m. La déformation longitudinale est la moyenne : $\varepsilon_{longi} = \frac{\varepsilon_1 + \varepsilon_3}{2}$ et la déformation transversale la moyenne : $\varepsilon_{trans} = \frac{\varepsilon_2 + \varepsilon_4}{2}$.

Pour étudier l'influence de la saturation (non mesurée, mais estimée par des travaux antérieurs menés au LML) sur le coefficient de Biot, les échantillons ont subi des cures à

différents niveaux d'humidité : séché à 60 °C (HR = 0 %), masse stable à HR 11 %, 59 %, 73 %, 85 %, 92 % et 98 %. L'humidité relative dans le dessiccateur est réglée par des solutions salines à une température constante de 20 °C (en pièce régulée). La cure se prolonge jusqu'à masse constante à 0,05 % sur 3 jours consécutifs. Tous les échantillons proviennent des cellules T1 EST51335 ou EST51446.

2.3 Méthodes expérimentales, procédures d'essais

2.3.1 Méthodes expérimentales

2.3.1.1. Identification des coefficients de Biot

L'argilite du COx de Bure est un matériau à comportement isotrope transverse. Le plan d'isotropie est le plan des strates d'axes structurels 1 et 2. L'axe 3 est l'axe vertical tel qu'indiqué dans la figure 2.2. Les échantillons sont généralement carottés à partir de cellules T1 d'axe horizontal. Même s'il y a des repérages permettant d'identifier ces axes, une certaine incertitude demeure quant à la position précise de l'axe vertical, ceci crée quelques problèmes d'instrumentation pour l'analyse des déformations.

Dans le cadre de la théorie poroélastique de Biot, le comportement du matériau peut s'écrire dans le repère de structure (avec compressions positives) ⁸⁰ par :

$$\begin{pmatrix} \varepsilon_{11} \\ \varepsilon_{22} \\ \varepsilon_{33} \\ \gamma_{12} \\ \gamma_{13} \\ \gamma_{23} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{1}{E_1} & \frac{-\nu}{E_1} & \frac{-\nu'}{E_1} & 0 & 0 & 0 \\ \frac{-\nu}{E_1} & \frac{1}{E_1} & \frac{-\nu'}{E_1} & 0 & 0 & 0 \\ \frac{-\nu'}{E_1} & \frac{-\nu'}{E_1} & \frac{1}{E_3} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{2(1+\nu)}{E_1} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{1}{G_{13}} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{1}{G_{23}} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \sigma_{11} - bP_i \\ \sigma_{22} - bP_i \\ \sigma_{33} - b_3P_i \\ \sigma_{12} \\ \sigma_{13} \\ \sigma_{23} \end{pmatrix} \quad (2.1)$$

b et b_3 sont les composantes du tenseur de Biot utilisées lors d'un comportement isotrope transverse. Pour identifier ces composantes, un chargement privilégié sera composé d'un chargement hydrostatique P_c et/ou d'une pression de pore P_i . Un cas intéressant que l'on envisage, déjà souligné dans la thèse de Sophie Cariou⁵, est celui où $b = b_3$. Dans ce cas, en posant $\alpha = P_i / P_c$, on obtient :

$$\left. \begin{aligned} \varepsilon_{11} &= \varepsilon_{11}(P_c)(1 - \alpha b) \\ \varepsilon_{22} &= \varepsilon_{22}(P_c)(1 - \alpha b) \\ \varepsilon_{33} &= \varepsilon_{33}(P_c)(1 - \alpha b) \\ \gamma_{ij} &= 0 \end{aligned} \right\} \quad (2.2)$$

avec

$$\varepsilon_{11}(P_c) = \varepsilon_{22}(P_c) = \frac{P_c}{E_1} (1 - (\nu + \nu')) \text{ and } \varepsilon_{33}(P_c) = P_c \left(\frac{1}{E_3} - \frac{2\nu'}{E_1} \right) \quad (2.3)$$

La jauge J_n donnera $\varepsilon_{nn} = \bar{\varepsilon} \cdot \vec{n} \cdot \vec{n}$ avec $\vec{n} : \begin{vmatrix} \cos\beta \\ 0 \\ \sin\beta \end{vmatrix}$, β est l'orientation de la jauge et est inconnue 'a priori' :

$$\varepsilon_{nn} = (\varepsilon_{11}(P_c)(\cos\beta)^2 + \varepsilon_{33}(P_c)(\sin\beta)^2)(1 - \alpha b) \quad (2.4)$$

La relation (2.4) montre que, quelle que soit la direction de la jauge, le coefficient b de Biot peut être tiré de deux tests: chargement hydrostatique et variation de la pression de pores. Le comportement de l'argilite peut ne pas être élastique linéaire (fissuration, plastification), il faudra donc procéder par des phases de déchargement en confinement P_c ou des accroissements de pression de pores P_i pour bénéficier du « retour » élastique et se situer dans le cadre de la poroélasticité. Donc, à partir d'une valeur stable de P_c , on procédera ainsi :

- L'étape 1 : chargement initial jusqu'à P_c .
- L'étape 2 : décharge de P_c à $P_c - \Delta P_c$ donne $\varepsilon_{22}(\Delta P_c)$ et $\varepsilon_{33}(\Delta P_c)$.
- L'étape 3 : recharge jusqu'à P_c , puis application d'une pression de pore P_i avec (par exemple) $\Delta P_i = \Delta P_c$. Cette phase est élastique car elle correspond à un déchargement en confinement effectif. On mesure alors $\varepsilon_{22}(\Delta P_i)$ et $\varepsilon_{33}(\Delta P_i)$.
- A l'étape 4 - on compare $\varepsilon_{22}(\Delta P_c)$, $\varepsilon_{33}(\Delta P_c)$ à $\varepsilon_{22}(\Delta P_i)$ et $\varepsilon_{33}(\Delta P_i)$, le résultat permet d'évaluer le coefficient b .

Si b n'est pas égal à b_3 , il faut faire des tests complémentaires de type chargement axial pour exploiter la relation (2.1) et évaluer aussi les autres propriétés élastiques. Le processus devient alors beaucoup plus complexe et il y a risque d'accumulation d'erreurs. Nous verrons cependant dans la suite que l'hypothèse $b = b_3$ est bien celle qui s'applique bien pour les expérimentations effectuées et présentées ici.

2.3.1.2. Intérêt de l'utilisation du gaz dans le contrôle de la pression de pore

Quand on considère la relation (2.1) on voit qu'il est nécessaire de contrôler simultanément la pression hydrostatique P_c et la pression de pores P_i pour déduire le coefficient de Biot des mesures de déformation. Le contrôle de P_c ne pose pas de problème particulier mais il n'en n'est pas de même pour obtenir une pression de pore homogène dans l'échantillon. Le premier problème est posé par la perméabilité à l'eau de l'argilite qui est de l'ordre de 10^{-19} m^2 à parfois moins de 10^{-20} m^2 ; cela signifie que sur de grands échantillons l'équilibre en pression P_i est long à atteindre et difficile à vérifier. De là, supposer acquise la saturation complète du matériau est parfois plus une hypothèse qu'un fait totalement avéré. D'autre part les différentes opérations d'extraction et d'usinage des éprouvettes conduisent à l'obtention d'un matériau partiellement saturé. Il faut donc soit le resaturer avant de le tester soit le saturer pendant le test. Ces différents aspects nous ont conduits à adopter la même

technique que celle utilisée dans la thèse de Sophie Cariou⁵, à savoir l'utilisation d'un gaz (argon) comme vecteur d'application de la pression de pore P_i . La pression du gaz est appliquée sur les deux faces de l'échantillon. Cette opération n'induit aucun écoulement ce qui ne change pas la saturation en eau de l'échantillon (ce point a été contrôlé par pesée). C'est un résultat important, car si on estime que la saturation n'est fonction que de la pression capillaire, cela traduit que toute augmentation de pression de gaz se traduit par une augmentation similaire de la pression d'eau : $\Delta P_w - \Delta P_g = 0$. De là on peut admettre que la pression de pore varie homogènement de $\Delta P_i = \Delta P_g$. Cette méthode a montré une équivalence totale quant aux coefficients de Biot mesurés, à l'eau et/ou au gaz sur grès et sur granite. Elle est de plus beaucoup plus rapide car le gaz injecté n'est pas actif sur le milieu (sauf pour le matériau complètement sec) i.e. pas d'effets électrostatiques, d'interaction chimique ou de variation de composition de l'eau présente. Elle peut, de plus, être utilisée sur matériaux partiellement saturés voire secs ; c'est un cas intéressant car il y aura une production importante de gaz in-situ^{81, 82}.

2.3.3 Procédure expérimentale

Tous les essais sont effectués avec un montage conçu au laboratoire et présenté en figure 2.3. Il est composé d'une cellule de confinement (jusqu'à 60 MPa) et d'un dispositif d'injection et de contrôle de la pression de gaz. Ce dispositif permet de mesurer la perméabilité ou de modifier la pression de pores. Plus de détails sont disponibles dans^{57, 83}. Tous les essais sont effectués dans une chambre climatisée à environ 20°C.

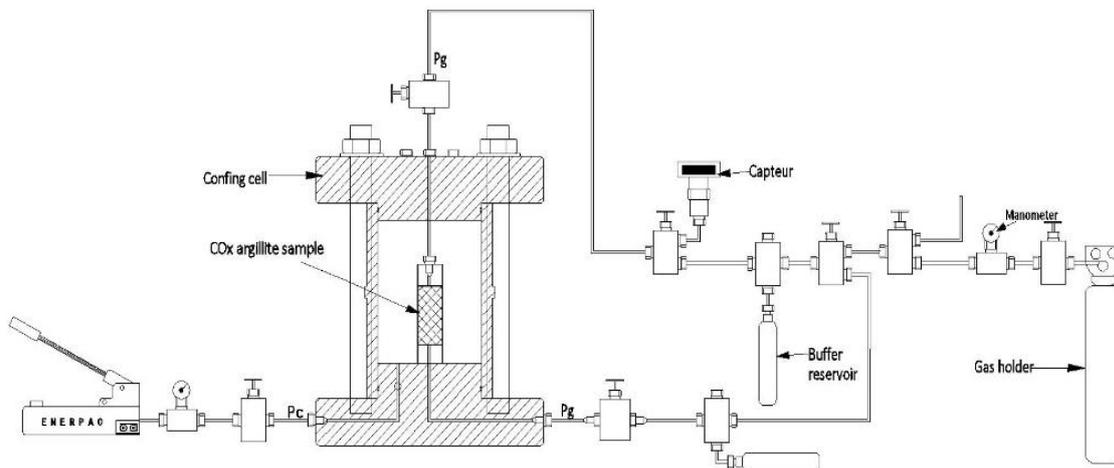


Figure 2.3 - Schéma du montage expérimental

Avant d'être testé l'échantillon est placé en dessiccateur sous une humidité relative contrôlée par solution saline. Le test est effectué quand la masse est constante trois jours consécutifs à 0,05% près. Un confinement initial de 3MPa est appliqué et c'est le point de départ du test. Ce premier chargement est susceptible de fermer certaines fissures si elles sont présentes.

2 cellules T1 ont été utilisées pour cette première campagne d'essais : EST51335 and EST51446. Les échantillons ont été sollicités sous différents chemins de chargement choisis pour :

- Soit évaluer l'influence de la pression de pores (figure 4(a))
- Soit évaluer l'effet de la contrainte effective au sens de Terzaghi (figure 4(b))

Dans ce second cas les accroissements de pression de pores ont été fixes à 3MPa (fig.4(b)). Les déformations sont mesurées après leur stabilisation qui peut prendre un certain temps nécessaire à l'uniformisation de la pression interne⁶².

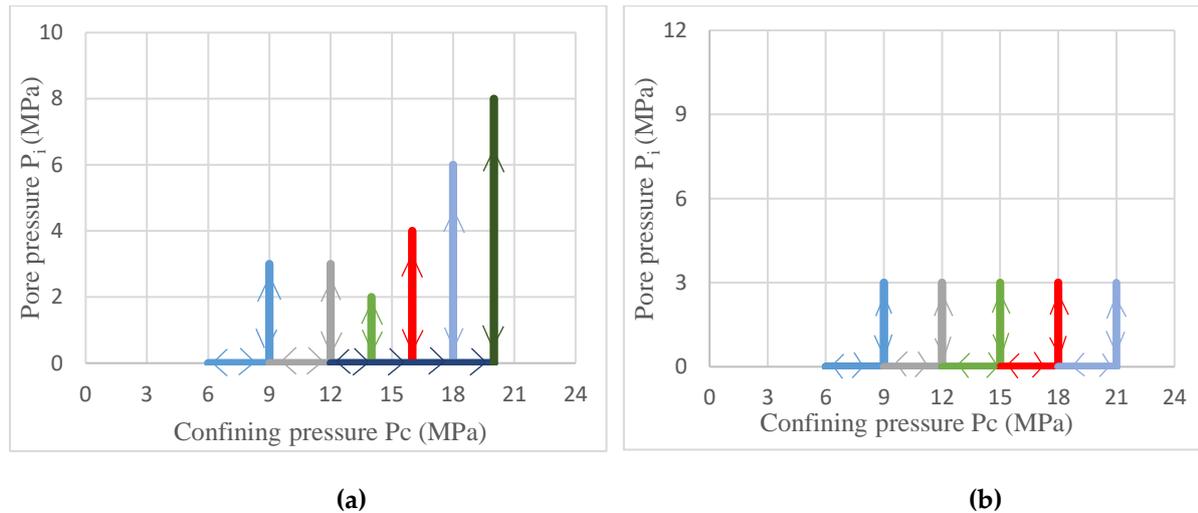


Figure 2.4 - Chemins de chargement: (a) EST51335 - influence de la pression de pore ; (b) EST 51446 - influence du confinement – pression de pore fixée à 3 MPa.

2.4 Résultats et analyses

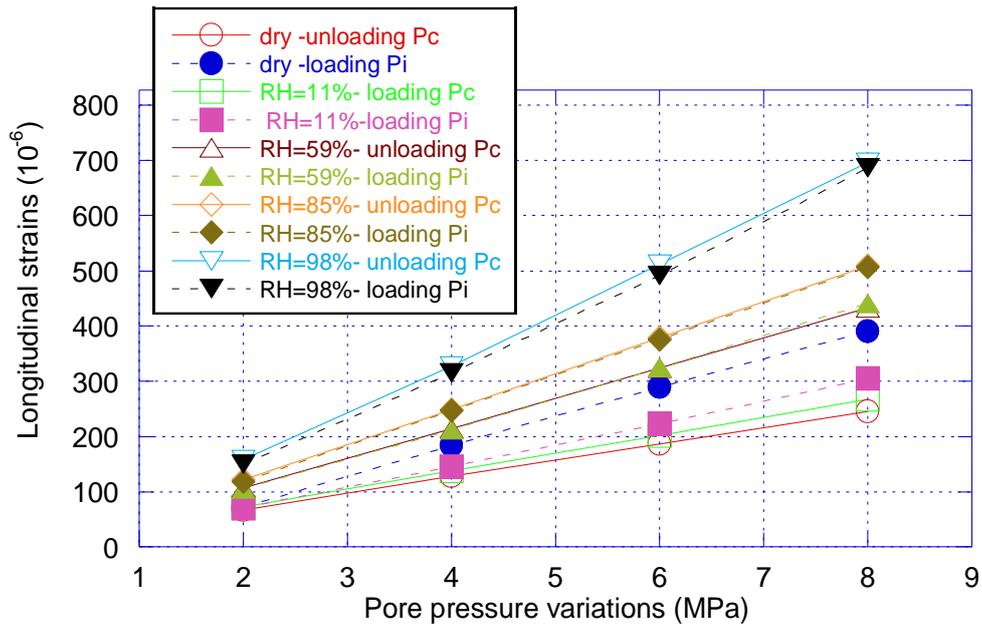
Comme nous l'avons souligné auparavant, les échantillons d'argilite sont testés après une cure à différents niveaux d'humidité relative, de l'état sec à 98 % de HR. -Comme nous pourrions l'observer dans les résultats, il y a une grande différence entre le matériau sec et le matériau humide. Pour le matériau humide les composantes du tenseur de Biot sont proches de 1 alors que pour le matériau sec (séché en étuve) ces composantes sont apparemment supérieures à 1. La cure humide à 11 % de HR représente un cas intermédiaire. Ceci justifie la réalisation d'essais supplémentaires qui seront présentés à la suite de ces premiers résultats.

2.4.1 Résultats pour le matériau issu de la cellule T1 EST51335 - mesures des déformations

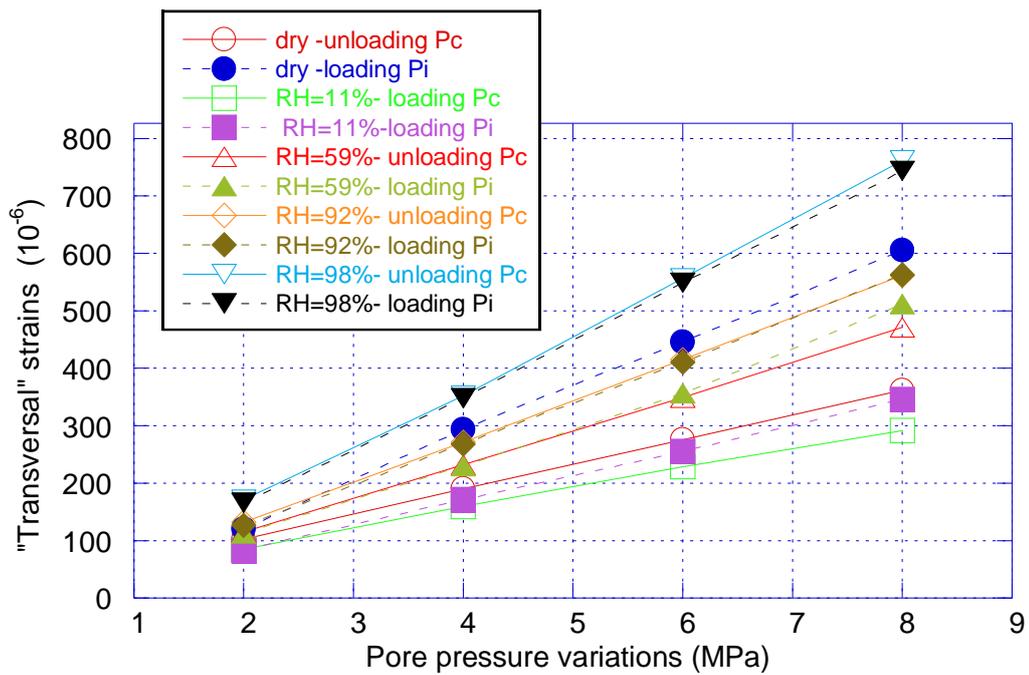
Rappelons que pour cette cellule T1 les essais ont consisté à comparer les déformations dues à des déchargements en confinement avec celles dues à des augmentations de pression de pore. Nous avons réalisé le test visant à déterminer si l'amplitude de ces variations (ΔP_c ou ΔP_i) avait une influence sur les composantes du tenseur de Biot, c'est le chargement illustré par la figure 2.4(a). On trouvera une présentation, dans la figure 2.5, de l'ensemble des résultats, incluant la comparaison des déformations, pour tous les échantillons soumis à cure humide

ou à séchage. Dans la présentation de ces résultats nous avons noté “déformation longitudinale” la déformation dans la direction 2 et “déformation transversale” la déformation dans la direction n (cf. figure 2.2). Les déformations longitudinales sont réellement comparables d’un échantillon à l’autre car la direction 2 est connue, en revanche il n’est pas intéressant de comparer la déformation transversale d’un échantillon à l’autre car n diffère selon l’échantillon. Les déformations longitudinales sont reportées dans la Figure 2.5(a) tandis que les transversales sont données dans la figure 2.5(b). On a pris comme référence la pression de confinement de 12MPa (c’est l’estimation in-situ) et pour étudier l’effet de la pression de pore 4 niveaux de confinements ont été utilisés : 14, 16, 18 et 20 MPa permettant de tester des augmentations de pression de gaz de 2, 4, 6 et 8 MPa. Chaque étape permet ainsi de revenir à 12 MPa comme niveau de pression effective de confinement (au sens de Terzaghi). On peut remarquer que, quel que soit le niveau de confinement, la déformation (longitudinale ou transversale) induite par le déconfinement ou par l’augmentation de pression interstitielle suit une variation linéaire, donc proportionnelle à l’incrément de charge. Ceci montre que ‘a priori’, le matériau issu de la EST51335 n’est pas (ou très peu) micro-fissuré. Si tel était le cas, l’augmentation du confinement rigidifierait le matériau et on aurait une diminution des déformations avec celui-ci. On retrouve également dans ces résultats un effet connu de la saturation en eau S_w (traduite ici en humidité relative HR – on pourra trouver une correspondance entre HR et S_w est dans la figure 2.6). Plus S_w augmente et moins le matériau est rigide (i.e. les modules d’élasticité diminuent^{33, 46}). On peut ainsi observer l’augmentation très nette des déformations avec le niveau de cure humide du matériau. De nombreuses études ont également montré que les modules E_1 ou E_2 sont plus grands que E_3 . Ce point est bien vérifié ici car on a toujours une déformation transversale plus grande que la longitudinale. L’examen des relations (2.3) et (2.4) montre la logique de ce résultat.

Le calcul des coefficients de Biot sera présenté et analysé un peu plus finement plus loin. On peut néanmoins, en comparant pour chaque niveau de pression de pore (ou de confinement), la réponse du matériau (déformation) sous un déconfinement ΔP_c ou une augmentation de pression de pore, de même amplitude ΔP_i , observer que les déformations sont très proches, que ce soit longitudinalement ou transversalement. Ceci montre avec les relations (2.2) et (2.4) que l’hypothèse $b = b_3 = 1$ est valable en première approche. Il faut néanmoins remarquer que ce résultat est différent pour le matériau sec avec une déformation due à ($\Delta P_i = \Delta P_c$) parfois beaucoup plus grande que celle due à ΔP_c et que l’écart s’amplifie avec l’amplitude de pression. On aurait donc un coefficient de Biot, apparent, plus grand que 1 et dépendant du niveau de pression de pore (ou du couple pression de pore – pression de confinement). Ce résultat « curieux » sera discuté plus en détail dans la suite. On peut aussi remarquer que la technique expérimentale avec injection de gaz pour piloter la pression de pore donne des résultats très cohérents et qu’elle permet de tester le matériau dans un état de très haute saturation. La Figure 2.6 montre qu’à 98% de HR, la saturation est d’environ 95 %.



(a) déformations longitudinales



(b) déformation transversales

Figure 2.5 - Résultats pour les échantillons équilibrés à différents niveaux d'humidité relative – effets de la pression de pore. On pourra constater la similitude des réponses lors d'une décharge en confinement avec celles obtenues lors d'une augmentation de pression de pore de même intensité. Echantillons provenant de la cellule EST51335.

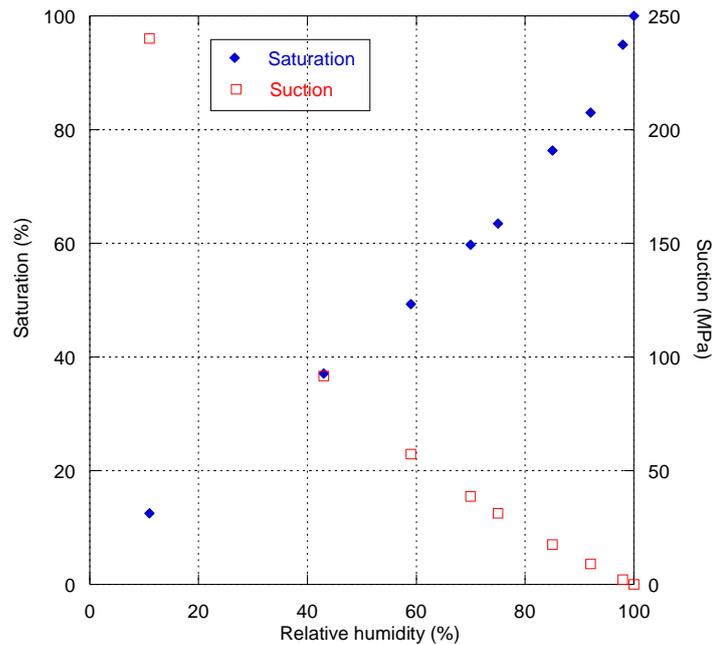
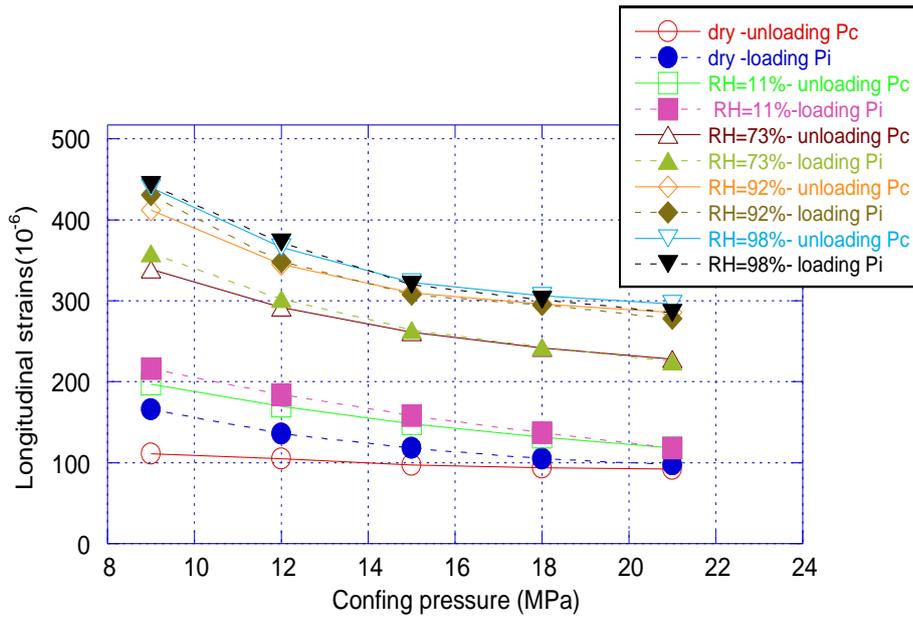


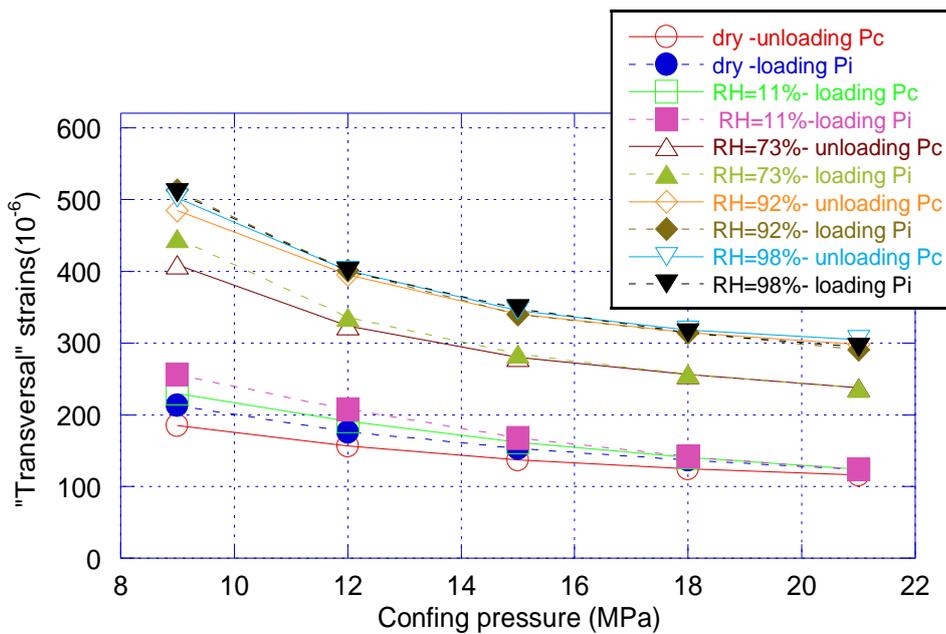
Figure 2.6 - Saturation moyenne de l'argilite en fonction de HR (%) (résultats obtenus au LML²⁴)

2.4.2 Résultats pour le matériau issu de la cellule T1 EST51446 - mesures des déformations

Les tests présentés auparavant, sur la cellule T1 EST51335, visaient à évaluer l'effet de la pression de pore sur la mesure des composantes du tenseur de Biot. Pour la campagne expérimentale menée sur la cellule T1 EST51446, l'objectif était de tester l'influence de la seule pression de confinement et de procéder pour chaque palier de mesure à des augmentations de pression de pore $P_i = 3$ MPa. En parallèle, les déchargements de confinement ΔP_c ont été eux aussi fixés à 3 MPa. Les déformations obtenues pour les deux types de chargement sont présentées figure 2.7(a) pour les longitudinales et figure 2.7(b) pour les transversales. On y retrouve, comme dans le cas précédent, la rigidification du matériau avec le degré de séchage et dans l'ensemble une déformation longitudinale inférieure à la déformation transversale. La différence majeure vient de l'effet du confinement qui, contrairement au cas précédent, conduit à une nette rigidification du matériau indiqué par la forte décroissance des déformations quand le confinement augmente. On peut ainsi supposer que le matériau est fissuré et que ces fissures se ferment progressivement sous la charge hydrostatique. L'examen comparatif des déformations, obtenues par augmentation de la pression de pore ou par un déconfinement de même valeur, indique de nouveau $b = b_3 = 1$. On pourra cependant noter que, pour le matériau sec, les déformations dues à l'augmentation de la pression de pore sont plus grande que celle due au déconfinement (soit un coefficient de Biot apparent plus grand que 1) mais que cet écart diminue avec le confinement.



(a) Déformations longitudinales



(b) Déformations transversales

Figure 2.7 - Résultats pour les échantillons équilibrés à différents niveaux d'humidité relative – Effets du confinement. On pourra constater la similitude des réponses lors d'une décharge en confinement avec celles obtenues lors d'une augmentation de pression de pore de même intensité 3 MPa. Echantillons provenant de la cellule EST51446.

2.5 Discussion sur les composantes du tenseur de Biot

Cette partie est destinée à commenter plus en détails les résultats des essais et leurs implications sur les composantes b et b_3 du tenseur de Biot. Les résultats, calculés par le rapport

entre $\varepsilon_{ii}(\Delta P_i) / \varepsilon_{ii}(\Delta P_c = \Delta P_i)$, sont respectivement donnés figure 2.8 (pour l'échantillon EST51335) et figure 2.9 (pour l'échantillon EST51446). Sachant que les incertitudes sur les déformations sont estimées à 5 %, l'incertitude résultante sur le coefficient de Biot est alors de 10 %. Pour l'échantillon EST51335, on peut observer, dans la figure 2.8, deux familles d'état du matériau qui conditionne le coefficient de Biot obtenu : soit l'état sec et très peu saturé (HR = 11 %) soit l'état plus humide. Pour le matériau sec, on a un net accroissement du coefficient de Biot avec la pression de pore, et il dépasse largement 1 pour atteindre des valeurs proches de 1.7 aux plus hauts niveaux de cette pression. Pour le matériau humide, le coefficient de Biot est très proche de 1 et, à l'incertitude près, on peut admettre ce résultat. Pour le matériau à 11 % d'humidité on est dans un cas intermédiaire avec un coefficient de Biot qui peut atteindre 1.2. Les résultats pour matériaux humides à très humides confirment et complètent ceux déjà obtenus par Sophie Cariou⁶². Globalement, on peut conclure que les composantes du tenseur de Biot valent 1 pour l'argilite humide et qu'ils ne sont pas (aux incertitudes près) modifiés par la valeur de la pression de pore ou par la valeur du confinement. Il reste cependant à identifier pourquoi les composantes « apparentes » sont parfois très largement supérieure à 1 pour l'argilite sèche. L'hypothèse d'une micro-fissuration, due au séchage et aux effets structuraux accompagnant le retrait a été évoquée. Elle ne paraît cependant pas logique car l'échantillon EST51335 n'est manifestement pas (ou très peu) fissuré. D'un point de vue théorique, si on se réfère aux travaux très complets de Zimmerman⁸⁴, le cas de multiples fissures, quelques soient leur forme, débouche à la limite sur un coefficient de Biot qui se rapproche de 1 mais qui en aucune manière ne peut être plus élevé. Le cas limite du matériau complètement fissuré et fractionné devrait d'ailleurs rejoindre le cas du matériau granulaire pour lequel $b = 1$ (cas du sable par exemple). L'explication du phénomène ne peut être purement poromécanique. Il faut alors considérer que l'argilite possède une micro-porosité non négligeable (figure 2.10) et que les gaz sont susceptibles de s'adsorber dans cette micro-porosité tout en provoquant un gonflement. On en trouve de nombreux exemples dans la littérature mais sur des matériaux très différents (charbon par exemple) et avec des gaz eux aussi différents (CO₂, CH₄...) ^{69,85}. On pourra se référer aux travaux de Brochard⁸⁶ pour l'aspect expérimental et à ceux de Vandamme⁸⁷ pour les aspects plus théoriques. Dans notre expérimentation un coefficient de Biot, supérieur à 1, signifie que l'expansion du matériau sous ΔP_i est plus grande que son expansion sous un déconfinement $\Delta P_c = \Delta P_i$. Ce résultat militerait pour un gonflement suite à l'adsorption de l'argon. Celui-ci augmenterait avec la pression de gaz ce qui est logique car cela induirait plus de quantité adsorbée. D'autre part, quand le matériau est plus humide, les micropores sont occupés par des molécules d'eau donc l'adsorption du gaz ne se fait plus que dans la mésoporosité sans, dans ce cas, se traduire par un gonflement significatif. L'humidité de 11 % est alors un cas intermédiaire pour lequel les pores « remplis d'eau » se situent dans la microporosité. Une expérience supplémentaire a alors été effectuée sur le matériau EST51446. Il est connu que l'hélium pur s'adsorbe très peu, par conséquent si l'hypothèse de l'adsorption d'argon et de gonflement induit est valable alors

on devrait retrouver un coefficient de Biot « à l'hélium » proche de 1. Nous avons ainsi mené quelques essais à différentes valeurs de confinement et de pression d'injection. Deux différences majeures sont apparues. Si on examine la figure 2.11, on voit sans ambiguïté qu'avec l'hélium on retrouve pour les deux directions (longitudinale et transversale) un coefficient de Biot très proche de 1 (quoique légèrement inférieur) alors que sur le même échantillon ces coefficients dépassent largement 1 pour atteindre des valeurs supérieures à 1.2, si le coefficient est mesuré par l'argon. Les essais à l'hélium ne montrent plus de dépendance envers la pression de pore. Il est aussi intéressant d'observer la figure 2.12 qui présente le temps de stabilisation des déformations lors de la mise en pression du gaz: 20 min pour l'hélium et plus de 50 min pour l'argon. Ce résultat nous semble lié à la différence de temps nécessaire pour obtenir le gonflement de l'argilite dû à l'adsorption. Il est ainsi clair que les composantes du tenseur de Biot, apparemment plus grandes que 1, viennent d'un effet du gaz utilisé et que très vraisemblablement la cause en est l'adsorption suivie d'un gonflement du matériau.

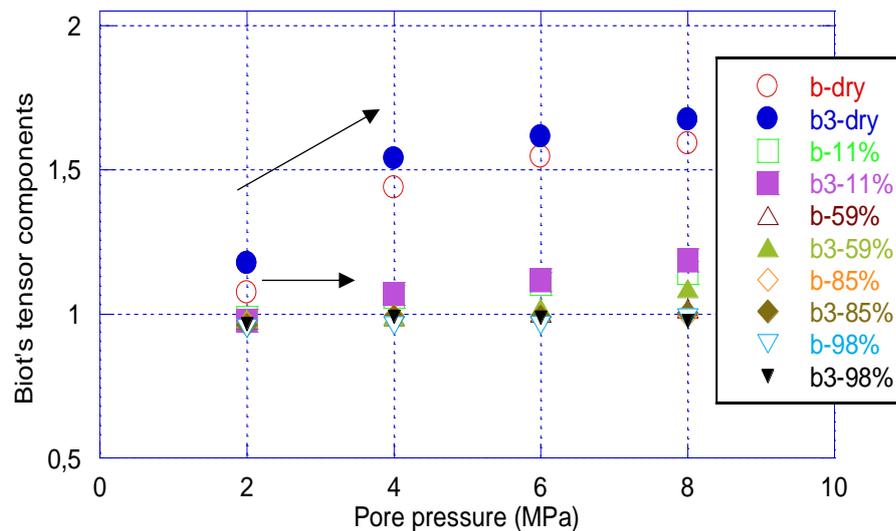


Figure 2.8 - Variation du coefficient de Biot pour les différentes directions avec la pression de pore pour différentes cures humides. Echallions provenant de la cellule EST51335

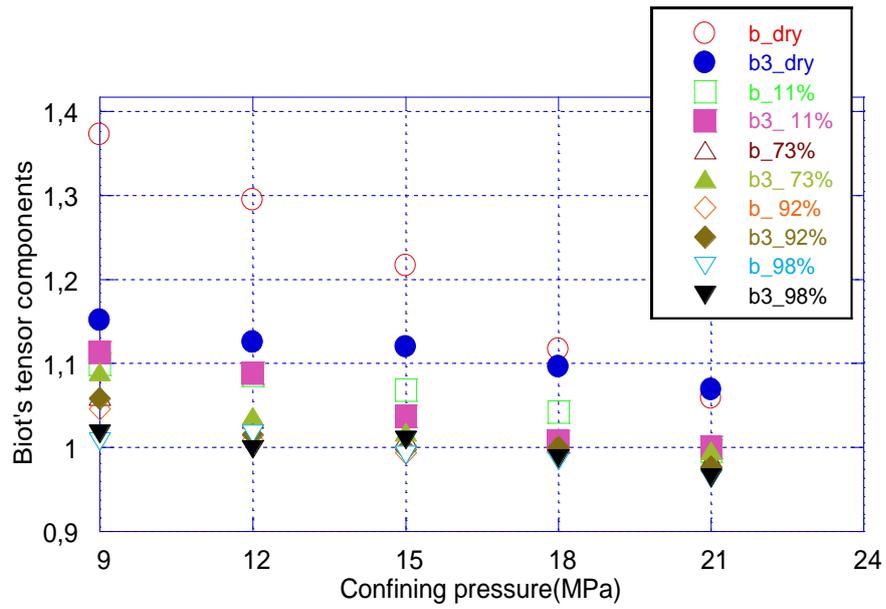


Figure 2.9 - Variation du coefficient de Biot pour les différentes directions avec la pression de pore pour différentes cures humides. Echantillons provenant de la cellule EST51446.

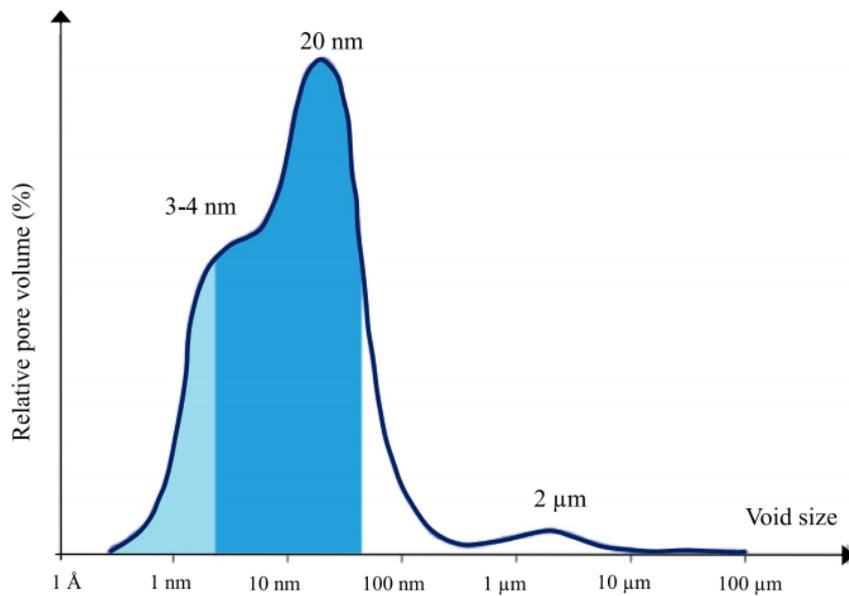


Figure 2.10 - Répartition des tailles de pores pour l'argilite¹

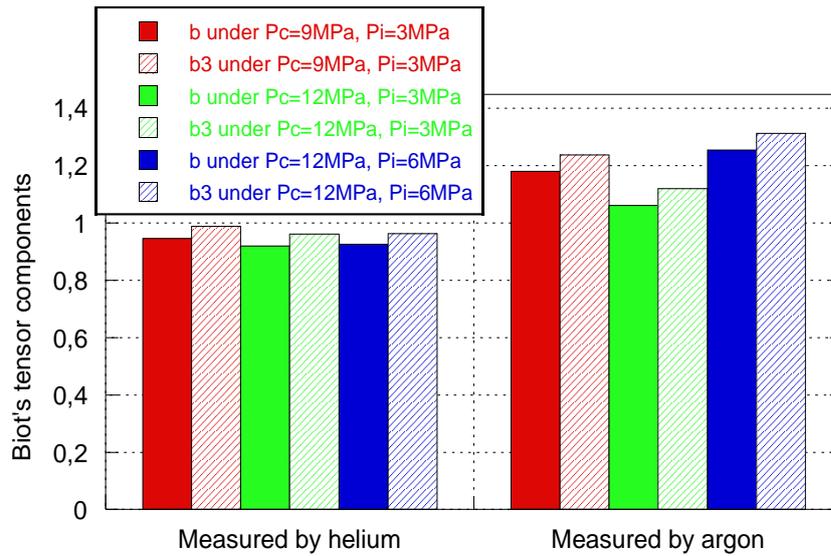


Figure 2.11 - Comparaison des coefficients de Biot obtenus avec l'hélium ou l'argon sur matériau sec. On notera que pour l'hélium on retrouve une valeur légèrement inférieure à 1.

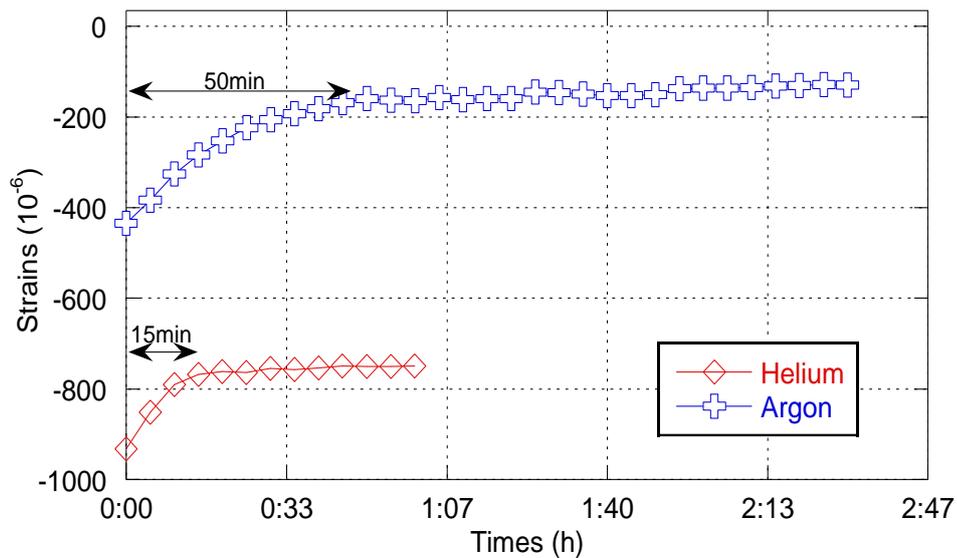


Figure 2.12 - Temps pour atteindre l'équilibre des déformations pour une pressurisation à l'hélium ou à l'argon

2.6 Conclusion

Cette première étude avait pour but de clarifier et d'approfondir l'étude poromécanique de l'argilite du COx qui est actuellement la roche d'accueil prévue par l'Andra pour les déchets radioactifs à haute activité et vie longue. La connaissance des composantes du tenseur de Biot de ce matériau isotrope transverse est essentielle pour, en particulier, évaluer les risques de claquage thermique dû à l'expansion de l'eau de site suite à l'élévation de température induite par l'activité des déchets radioactifs. Ce travail a tout particulièrement porté sur ces mesures

et, pour pallier aux grandes difficultés d'utiliser l'eau comme fluide poreux, une technique de mesure avec du gaz (argon) a été employée car elle avait déjà donné satisfaction pour des travaux antérieurs. Cette technique s'est de nouveau révélée très efficace pour mesurer le coefficient de Biot du matériau sec à presque complètement saturé d'eau. Les différents essais ont confirmé l'augmentation de la raideur de l'argilite quand elle se désature et l'anisotropie du matériau, plus rigide dans le plan horizontal que dans le plan vertical. Ils ont surtout démontré que les composantes du tenseur de Biot sont égales à 1 quand le matériau est humide, sans dépendance particulière envers la pression de confinement et la pression de pore exercée par le gaz. En revanche, un résultat inattendu a été obtenu sur le matériau sec pour lequel les coefficients de Biot ont largement dépassé 1. Après avoir écarté les causes mécaniques, nous avons supposé que ce phénomène pouvait être dû à un gonflement du matériau suite à l'adsorption d'argon dans la microporosité de l'argilite. Une expérience complémentaire a ainsi été conduite avec de l'hélium (peu adsorbable) et de l'argon, sur le même échantillon. Les résultats sont sans ambiguïté car, avec l'hélium, on retrouve bien que le coefficient de Biot vaut 1 alors qu'elle dépasse 1.2 avec l'argon. Le phénomène d'adsorption-gonflement avec l'argon peut alors être considéré comme plausible.

Chapitre 3 Étude des composantes « apparentes » du tenseur de Biot suite à l'adsorption-gonflement de l'argilite

3.1 Introduction

Dans la partie précédente, nous avons mesuré le coefficient de Biot de l'argilite à l'état partiellement saturé et sec, puis soulevé le cas des composantes « illogiques » du tenseur (supérieures à 1) pour le matériau à l'état sec. Dans ce chapitre, nous poursuivons l'étude sur ces valeurs « illogiques » en menant deux séries d'essai. Dans la première, les échantillons d'argilite à l'état sec provenant de différentes carottes sont utilisés pour des essais de poromécanique, de perméabilité et de compression triaxiale. En parallèle, on utilise trois types de gaz (hélium, argon, CO₂) possédant chacun une capacité d'adsorption différente. L'objectif de cette deuxième série est bien de vérifier la capacité d'adsorption-gonflement de l'argilite qui est alors l'objet d'une comparaison avec d'autres matériaux (mortier, grès) dont les structures de pores et les compositions minérales sont très différentes.

3.2 Essais supplémentaires sur le couplage fluide squelette avec adsorption

Comme nous l'avons conclu lors du chapitre précédent, les composantes du tenseur de Biot sont proches de 1 lorsque le matériau est à l'état partiellement saturé, mais supérieures à 1 lorsque le matériau est à l'état sec. Tous les essais avaient été effectués sur des échantillons provenant de deux cellules T1, EST51335 et EST51446. L'adsorption-gonflement de l'argilite n'a été étudiée que sur des échantillons issus de la cellule T1 EST51446 en nous servant de deux types de gaz (l'argon et l'hélium). Afin d'approfondir l'étude sur les composantes apparemment « illogiques » du tenseur de Biot de l'argilite, nous avons multiplié les origines des échantillons et les gaz utilisés.

3.2.1 Préparation des échantillons

Le tableau 3.1 donne les principales caractéristiques des échantillons et les types d'essai effectués sur chacun d'entre eux. Comme précédemment, de petits échantillons, 20 mm de diamètre et 40 mm de longueur, sont préparés. Les échantillons plus grands, 37 mm de diamètre et 70 mm de longueur, servent pour l'essai de compression triaxiale. Tous les échantillons sont rectifiés afin d'obtenir un parallélisme satisfaisant des faces puis, ensuite séchés à 60° C jusqu'à l'obtention d'une masse constante. Deux jauges croisées sont collées sur la surface des échantillons, l'acquisition de leurs données s'effectue soit à l'aide d'un extensomètre numérique ou de LabView avec une précision de $\pm 10^{-6}$ m/m. Ces jauges permettent l'enregistrement des déformations dans les directions longitudinale et transversale.

Tableau 3.1 - Caractéristiques principales des échantillons testés

Carotte	Nombre	Numéro d'échantillon	Dimensions		Teneur en eau (%)	Densité (g.cm ⁻³)	Type de l'essai	Gaz utilisé
			Diamètre (mm)	Hauteur (mm)				
EST51326	2	No.1	19.34	40.62	5.97	2.42	Poromécanique	Argon
		No.3	19.11	40.42	5.76	2.43		
EST51335	2	No.7	19.62	40.23	4.71	2.36	Poromécanique	
		No.4	19.73	40.12	4.91	2.31		
EST51446	4	No.1	19.80	41.00	6.37	2.15	Poromécanique	
		No.3	19.78	40.80	6.26	2.15		
		No.4	19.64	42.04	6.32	2.30	Poromécanique et perméabilité au gaz	
EST49114	1	No.1	19.55	42.37	6.56	2.48	Poromécanique et perméabilité au gaz	
EST53642	3	No.7	37.70	61.78	6.54	2.40	Compression triaxiale	N/A
		No.1	37.61	61.71	6.58	2.42		Hélium
		No.2	37.63	61.71	6.60	2.42		CO ₂

3.2.2 Procédure expérimentale

Comme mentionné précédemment, le processus de mesure se limite aux phases de chargement/déchargement en pression de confinement et/ou en pression de pore. La méthode d'essai permettant l'identification des composants du tenseur de Biot et la perméabilité (si nécessaire) pour une valeur donnée de P_c (cf. figure 3.1) se décompose comme suit :

- **La phase de chargement hydrostatique.** A partir d'une pression de confinement initiale de 3 MPa, la pression augmente jusqu'à P_c ;
- **La phase de déchargement hydrostatique.** $\varepsilon_{11}(\Delta P_c)$ et $\varepsilon_{33}(\Delta P_c)$ sont mesurés pendant la phase de déchargement $-\Delta P_c$. L'échantillon est ensuite rechargé à P_c ;
- **Chargement en pression de pore.** $\varepsilon_{11}(\Delta P_i)$ et $\varepsilon_{33}(\Delta P_i)$ sont mesurés pendant l'injection de gaz dans l'échantillon, jusqu'à une valeur ΔP_i ($\Delta P_i = \Delta P_c$).

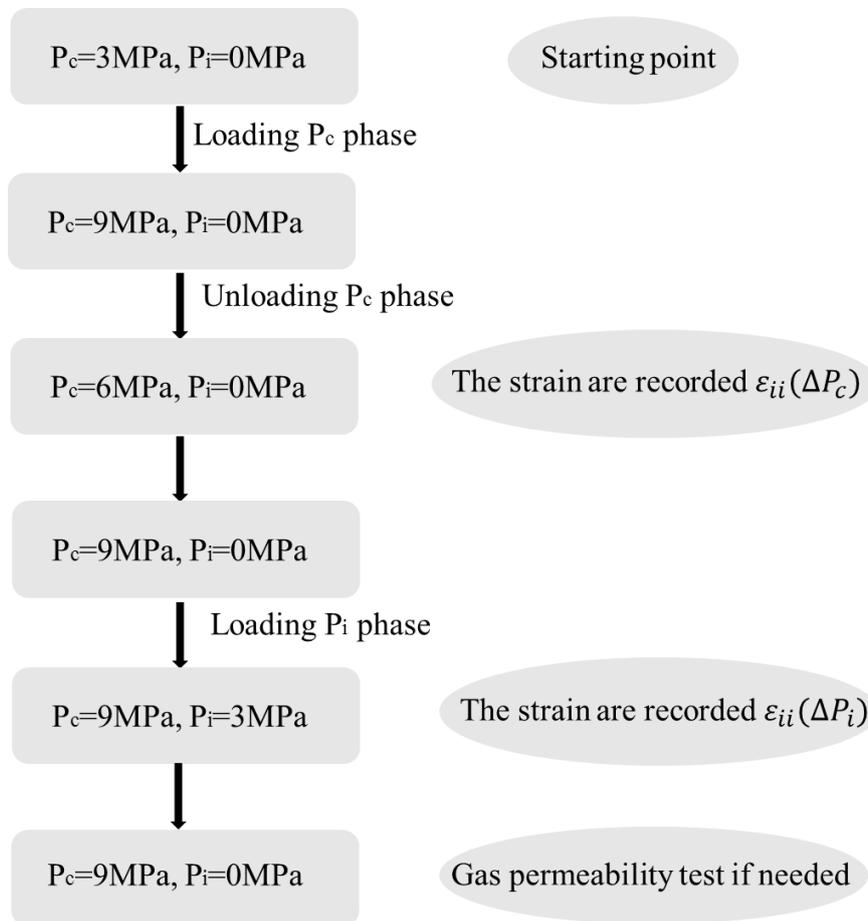


Figure 3.1 - Les phases de mesure typiques des composantes du tenseur de Biot (Nous avons pris $P_c=9\text{MPa}$ pour exemple)

Suite à l'égalité $\Delta P_i = \Delta P_c$ dans le processus de mesure, les composantes du tenseur de Biot $b_i = b$, (quelle que soit la direction « i »), peuvent se calculer comme suit :

$$b_i = -\frac{\varepsilon_{ii}(\Delta P_i)}{\varepsilon_{ii}(\Delta P_c)} \quad (3.1)$$

Notons que la validité de la relation (3.1) ne signifie pas que le matériau est isotrope, par exemple $\varepsilon_{11}(\Delta P_c \text{ or } \Delta P_i)$ peut être différent de $\varepsilon_{33}(\Delta P_c \text{ or } \Delta P_i)$. En fait, $b = b_1 = b_3$ signifie simplement que le rapport $\varepsilon_{ii}(\Delta P_i)/\varepsilon_{ii}(\Delta P_c)$ est le même pour toute direction « i ». En conséquence, l'égalité $b_1 = b_3$ reste cohérente avec un comportement de roche isotrope transverse. Si la relation (3.1) n'aboutit pas aux mêmes résultats pour b_1 et b_3 alors celle-ci ne peut pas être utilisée et d'autres essais doivent être menés pour obtenir d'autres propriétés élastiques nécessaires au calcul de b_i . Comme montré dans Cariou et al⁶², Yuan et al⁸⁸, si $b_1 \neq b_3$, il faudrait mesurer les modules de Young E_1 , E_3 , et les coefficients de Poisson ν_{12} et ν_{23} pour identifier b_1 et b_3 .

Afin d'éliminer les éventuelles perturbations dues au gaz résiduel, une attente s'avère nécessaire avant d'utiliser un autre gaz. La figure 3.2 donne le dispositif expérimental utilisé pour ces essais; il est presque identique à celui utilisé dans le chapitre 3. Le tableau 3.1 montre que certains échantillons sont également utilisés pour l'essai de perméabilité au gaz. Pour cet essai, la valve V_4 est démontée afin que le gaz puisse être injecté en bas de la cellule hydrostatique. Un débitmètre est installé en haut de la cellule (cf. figure 3.2 (a)), permettant la mesure par le méthode de débit "quasi" permanent⁸⁹. Tous les essais sont effectués dans une chambre climatisée à environ 20°C.

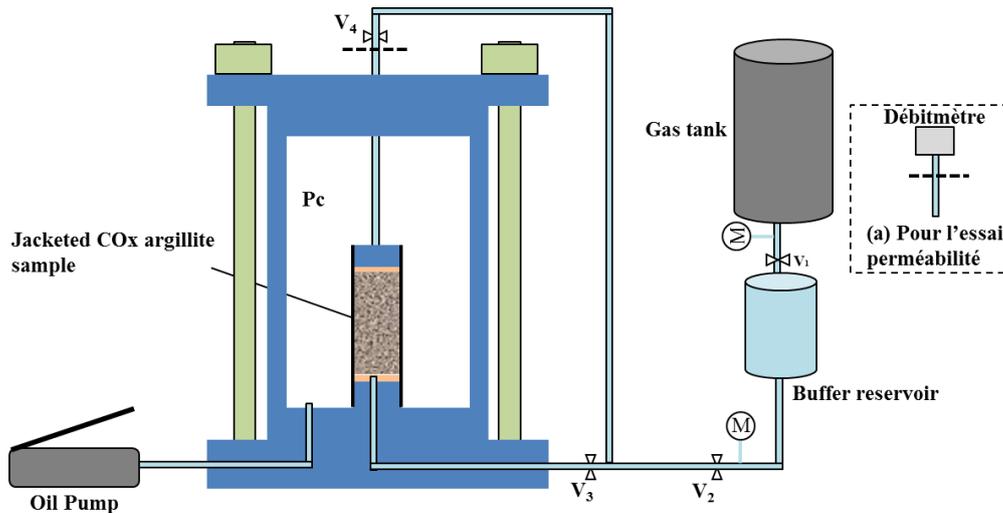


Figure 3.2 - Schéma de principe du dispositif des essais perméabilité au gaz et pomécanique (Le schéma (a) de droite représente le débitmètre pour l'essai perméabilité au gaz).

3.2.3 Résultats et analyses

Comme mentionné ci-dessus, nous suspectons un gonflement dû à l'adsorption de gaz lorsque le gaz (argon) est injecté dans l'argillite à l'état sec. Les résultats actuels permettent de mieux appréhender ce phénomène.

3.2.3.1 Les essais préliminaires – effet de confinement et la pression de pore

(a) Effets de la pression de confinement

Une série d'essais est effectuée avec des confinements différents, commençant à 9 MPa pour augmenter progressivement jusqu'à 21 MPa avec des incréments de $\Delta P_c = 3$ MPa. La pression de pore est $P_i = 3$ MPa quel que soit le niveau de P_c . Les résultats sont présentés figure 3.3. D'abord, nous observons que les composantes du tenseur de Biot sont toujours supérieures à 1 car variant entre 1.05 et 1.4. Ces résultats sont cohérents avec ceux obtenus par Cariou et al⁶² (cf. figure 3.3) et par Bignonnet⁹⁰. En outre, la comparaison entre b_1 et b_3 montre une anisotropie matérielle. Ce n'était pas le cas pour les échantillons partiellement saturés pour lesquels $b_1 = b_3 = b = 1$ ⁸⁸. L'augmentation de confinement conduit systématiquement à une diminution des composantes apparentes de Biot, nous les avons qualifiées d'« apparentes » car ces composantes particulières ne sont pas des propriétés poroélastiques. Deux causes principales peuvent être incriminées pour justifier cette diminution: un effet de microfissures car si des fissures se ferment cela conduit à une moindre expansion du matériau avec l'augmentation de la pression de pore et/ou une inhibition partielle de l'adsorption-gonflement. Le terme « partielle » est utilisé car, même à haute pression de confinement, les composantes de Biot restent supérieures à 1. La sensibilité du matériau à la pression de confinement varie en fonction des divers échantillons et de leur origine, mais l'état initial du matériau naturel, avant le test, joue un rôle essentiel. Il peut y avoir des différences dans la structure poreuse, la minéralogie, les tailles et les nombres de fissures, etc. Par exemple, on peut voir dans les résultats de Cariou et al⁶² que les composantes du tenseur de Biot (cellule T1 EST33957) sont plus élevées pour le matériau séché à 200°C par rapport au même matériau séché à 60°C. Un séchage aussi élevé peut entraîner plus de fissuration et conduire à plus de microporosité disponible pour l'adsorption de gaz.

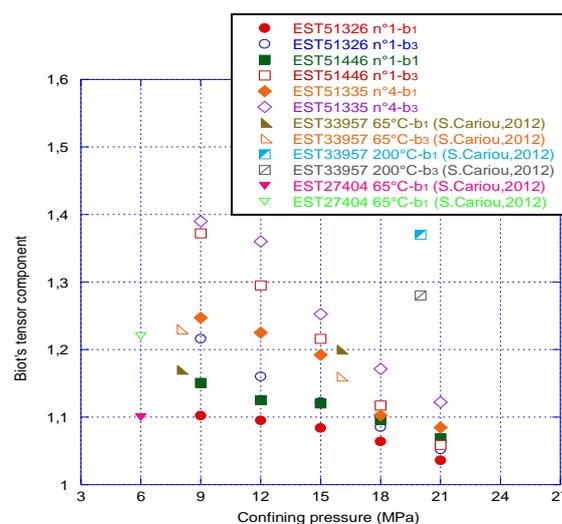


Figure 3.3 - Evolution des composantes du tenseur de Biot avec différentes pressions de confinement pour différents échantillons de cellule T1

(b) Effets de la pression de pore

Une deuxième série d'essais a été mise en œuvre pour évaluer l'effet de la pression de pore. Nous avons utilisé quatre niveaux de pression de confinement (14, 16, 18, 20MPa) et quatre niveaux de pression de gaz (2, 4, 6, 8MPa) pour obtenir, dans chaque cas, le même niveau de pression effective de Terzaghi ($P_c - P_i = 12\text{MPa}$). La figure 3.4 présente nos résultats. Les composantes du tenseur de Biot sont supérieures à 1 et varient entre 1.07 et 1.68 selon la pression de pore appliquée comme dans le cas précédent, L'anisotropie est de nouveau mise en évidence dans cette série d'essais. En parallèle, nous observons que les composantes du tenseur de Biot augmentent avec l'augmentation de la pression de pore. Même si les conditions initiales des échantillons sont susceptibles de jouer un rôle important, les résultats actuels sont compatibles avec un phénomène d'adsorption (voir la partie suivante).

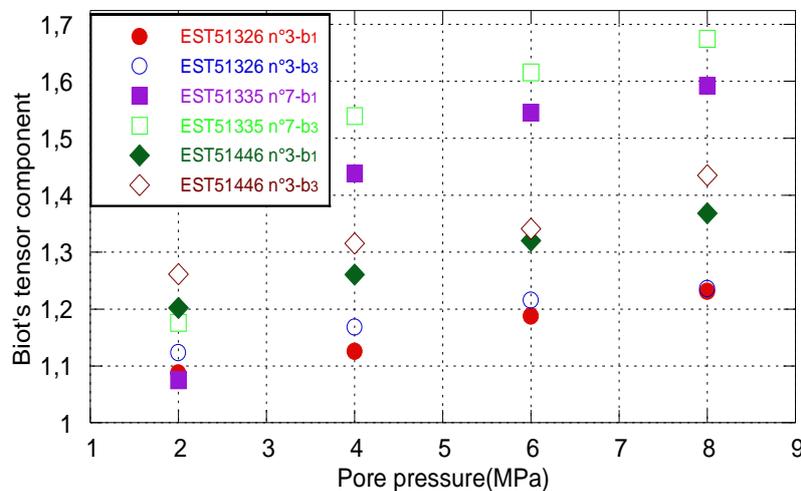


Figure 3.4 - Evolution des composantes du tenseur de Biot avec différentes pressions interstitielles pour différents échantillons de cellule T1

3.2.3.2 Les essais complémentaires impliquant des effets de l'adsorption-gonflement

(a) La phénomène de l'adsorption-gonflement

Comme nous l'avons observé précédemment, quelles que soient les conditions d'essai, les composantes du tenseur de Biot sont toujours supérieures à 1 pour l'échantillon à l'état sec. Nous en concluons que ce phénomène n'est pas un phénomène purement poromécanique et que malgré sa neutralité l'argon induit des effets « parasites ».

D'un point de vue général, le phénomène de l'adsorption-gonflement se produit dans deux conditions principales:

- L'adsorption nécessite la présence d'adsorbat et d'adsorbant
- Les matériaux doivent pouvoir gonfler.

L'argilite du COx a longtemps été identifiée comme un milieu microporeux typique qui présente un potentiel de gonflement lorsque la vapeur d'eau ou l'eau liquide est impliquée^{10, 19}. Dans les macropores, les molécules fluides sont nombreuses mais les effets de surface à cette échelle peuvent être négligés. Dans les micropores, les molécules fluides ne sont pas dispersées et elles interagissent avec la matrice solide. Elles s'adsorbent sur la surface des pores (appelée adsorption physique) ou à l'intérieur de la matrice (appelée adsorption chimique). Dans les mésopores, les molécules fluides sont dans un état intermédiaire conduisant à une possible adsorption partielle^{62, 87, 91}. Par conséquent, compte tenu du caractère multi-échelle des pores de l'argilite et des conditions d'adsorption, un fluide tel H₂O, CO₂ ou CH₄ peut être facilement absorbé. De plus, l'adsorption-gonflement est amplifiée par l'existence de minéraux riches en argile gonflante, tels que la smectite et l'I/S (illite/smectite). La structure de l'argilite se compose de plaquettes d'argilite fine et de pores entre les plaquettes auto-alignées. Lorsque ces pores intraparticulaires sont remplis de liquide absorbable, il existe une différence de concentration ionique entre ceux-ci et les plaquettes. Les ions fluides se déplacent ensuite vers la matrice sous les forces de Van der Waals, la force électrostatique et la force d'interaction directe ou indirecte⁶⁸. Ils peuvent être adsorbés à la surface de (ou dans) la matrice^{67, 92}, la figure 3.5 schématise ces mécanismes. Ces processus généreront une pression qui entraîne une expansion des pores intraparticulaires et diminue les forces de cohésion entre les plaquettes auto-alignées.

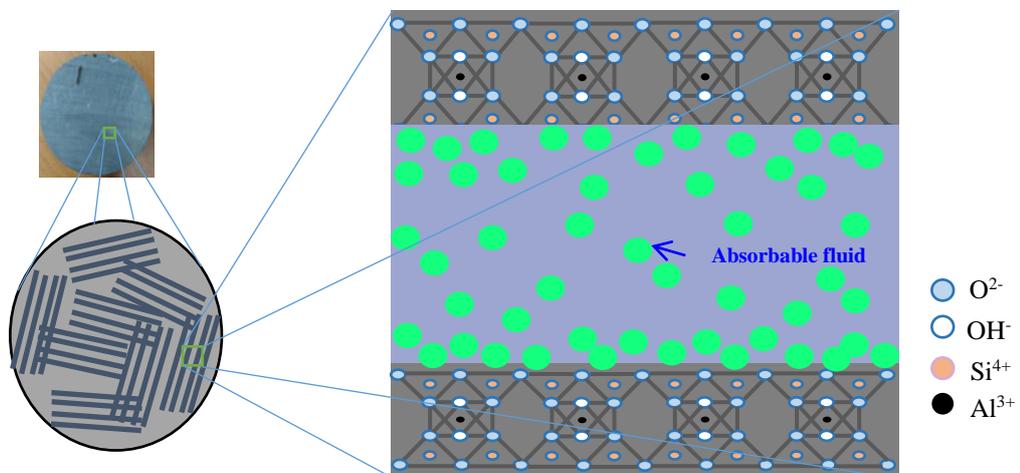
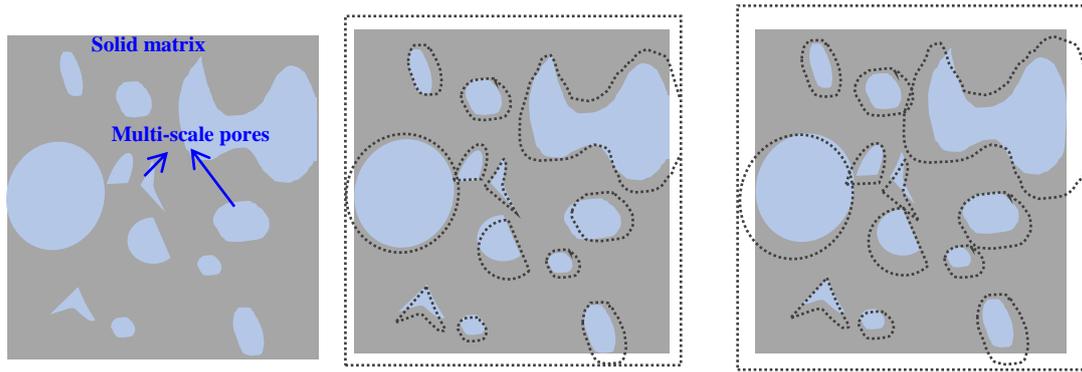


Figure 3.5 - Schéma du mécanisme de l'adsorption-gonflement de l'argilite, illustré par des plaquettes d'argilite auto-alignées représentatives et un pore inclus (Redessiné à partir de^{67, 68}). Lorsque le pore est rempli de fluide absorbable, en raison de la différence de concentration entre les plaquettes et les pores, le fluide s'accumule sur les plaquettes, puis une pression d'adsorption-gonflement apparaîtra, et produira un gonflement en argilite à l'échelle macroscopique.



(a) État initial non déformé (b) Après le déchargement ΔP_c (c) Après le chargement ΔP_i

Figure 3.6 - Schéma de la déformation volumétrique sous trois conditions de chargement: (a) est l'état initial non déformé; (b) est l'état déformé après le déchargement ΔP_c ; (c) est l'état déformé après le chargement ΔP_i .

Cette capacité de déformation par adsorption-gonflement explique la déformation supplémentaire qui se produit durant la phase de chargement en pression des pores et conduit à $\varepsilon_{ii}(\Delta P_i) > \varepsilon_{ii}(\Delta P_c)$ ($\Delta P_i = \Delta P_c$) (Comme montré dans la figure 3.6). Nous en déduisons que les composantes du tenseur de Biot sont apparemment plus grandes que l'unité (1.0).

(b) Effet de l'adsorption-gonflement sur les composantes du tenseur de Biot

L'argon, gaz faiblement adsorbant, est utilisé pour les essais. Cela donne des composantes du tenseur de Biot légèrement (mais significativement) supérieures à 1. Nous avons alors utilisé d'autres gaz afin de vérifier si les composantes apparentes en dépendent. Des expériences supplémentaires sont donc menées pour étudier les effets du type de gaz sur les composantes du tenseur de Biot et également sur la perméabilité.

Trois gaz sont utilisés dans ces séries d'essais : l'hélium (gaz non adsorbable), l'argon (gaz faiblement adsorbable) et le CO_2 (gaz très adsorbable)^{93, 94}. Comme montré dans le tableau 3.1, l'hélium et de l'argon sont utilisés pour l'échantillon EST51446 n°4, tandis que l'hélium et le CO_2 sont utilisés pour l'échantillon EST49114 n°1. L'essai perméabilité au gaz précède l'essai poromécanique. En outre, pour les deux échantillons, l'hélium est toujours utilisé en premier pour éviter de fausser les résultats.

Les composantes du tenseur de Biot de l'échantillon EST51446 n°4 sont mesurées avec l'hélium ou avec l'argon sous trois conditions de chargement: $P_c = 9\text{MPa}$, $P_i = 3\text{MPa}$; $P_c = 12\text{MPa}$, $P_i = 3\text{MPa}$ et $P_c = 12\text{MPa}$, $P_i = 6\text{MPa}$. Les résultats que présente la figure 3.7(a), montrent que les composantes du tenseur de Biot mesurées par l'hélium sont très proches, mais n'excédant jamais 1 dans les deux directions (transversale et longitudinale), en outre nous notons que les composantes mesurées avec l'argon sur le même échantillon, excèdent toujours 1 (elles valent plus ou moins 1.2). Ces résultats sont cohérents avec les résultats obtenus lors des essais

précédents. De plus, une anisotropie légère mais détectable se produit avec l'utilisation d'argon. Deux composantes de Biot sont mentionnées dans les différentes figures: b_1 et b_3 qui sont respectivement obtenues avec les déformations longitudinale et transversale. La littérature nous indique que l'argilite est plus rigide dans la direction horizontale (déformation longitudinale) que dans la direction verticale^{46, 62}. La déformation transversale est une combinaison des déformations verticale et horizontale. Il est donc tout à fait logique de trouver b_3 supérieur à b_1 , ce qui signifie que le gonflement, suite à l'augmentation de la pression des pores, est moindre pour la direction horizontale. Le même effet se voit légèrement pour l'hélium quoique l'approximation $b = b_1 = b_3 = 1$ puisse être encore effectuée dans ce cas. Comme le montre la figure 3.7(a), les composantes du tenseur de Biot mesurées avec l'argon sont plus sensibles aux différentes conditions de chargement, nous en déduisons que la pression de confinement et la pression de pore peuvent influencer la déformation d'adsorption-gonflement, ce qui conduit à la variation des propriétés poroélastiques apparentes de l'argilite du COx et à des valeurs des composantes de Biot supérieures à unité.

Pour l'échantillon EST49114 n°1, les composantes du tenseur de Biot sont mesurées avec l'hélium ou le CO₂ dans les conditions de chargement: $P_c = 8\text{MPa}$, $P_i = 2\text{MPa}$. Les résultats sont présentés dans la figure 3.7(b). Nous observons que les composantes mesurées avec l'hélium sont encore proches de 1. L'utilisation de CO₂ conduit à des effets spectaculaires car les « composantes de Biot » se situent entre 2.5 et 4.8. Ceci est dû à une grande quantité de CO₂ facilement adsorbé dans l'argilite conduisant à une déformation de gonflement considérable de l'argilite à l'état sec. Par conséquent, $\varepsilon_{ii}(\Delta P_i)$ est 2.5 à 4.8 fois plus élevé que $\varepsilon_{ii}(\Delta P_c = \Delta P_i)$ (comme l'illustre la figure 3.7). L'utilisation du CO₂, plus que celle de l'hélium ou de l'argon, souligne l'anisotropie du matériau. Le cas de l'adsorption du CO₂ dans une anisotropie légère a déjà été observé pour le charbon et le schiste⁹⁵⁻⁹⁷. Il serait très intéressant d'approfondir l'étude de ce phénomène pour l'argilite du COx et de continuer à mener des études complémentaires.

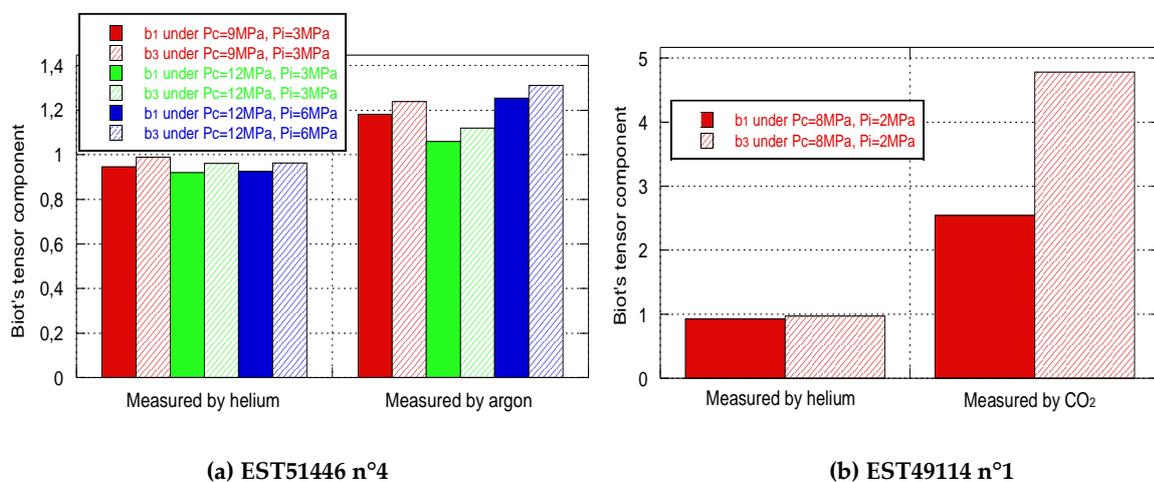


Figure 3.7 - Les composantes tenseur de Biot des deux échantillons mesurés par l'hélium et l'argon ou l'hélium et CO₂

Le temps de stabilisation de la déformation, pendant le processus de pressurisation du gaz, a aussi été relevé (cf. figure 3.8).

- Pour l'échantillon EST51446 n°4, les déformations pour l'hélium sont stables après 20 min, alors que plus de 50 minutes sont nécessaires pour l'argon.
- Pour l'échantillon EST49114 n°1, 35min suffisent pour obtenir une stabilité pour l'hélium, alors que le CO₂ nécessite 4h20min.

Ces différents temps de stabilisation dépendent des capacités d'adsorption constatées de ces trois gaz car ce phénomène est un processus consommant du temps⁹⁸.

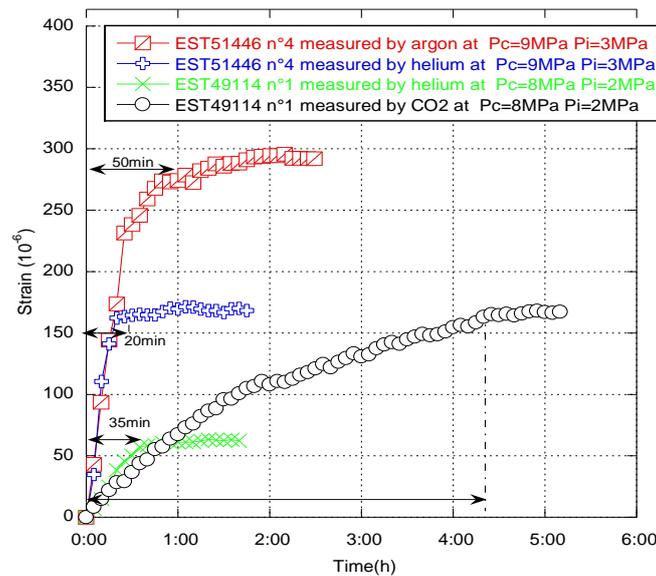


Figure 3.8 - Le temps de stabilisation des deux échantillons lors de la pressurisation à deux gaz

(c) Effet de l'adsorption-gonflement sur perméabilité au gaz

À partir des études expérimentales ci-dessus, nous concluons que le fait que les coefficients de Biot soient supérieurs à 1 est bien provoquée par un gonflement d'adsorption. Par conséquent, nous en déduisons que ce gonflement d'adsorption devrait entraîner un changement dans la structure des pores, mis en évidence par un effet supplémentaire sur les propriétés de transport du matériau. Dans ce contexte, une série d'essais de perméabilité au gaz est effectuée sur le même échantillon et avec les mêmes gaz que dans la partie précédente.

Les résultats de l'essai perméabilité au gaz sont présentés dans la figure 3.9. Nous observons que $K(\text{hélium})$ est le plus élevé (environ 10^{-18} - 10^{-19}m^2), tandis que $K(\text{argon})$ est comparable tout en étant légèrement inférieur (environ 10^{-19}m^2). Cependant, la différence est très importante avec $K(\text{CO}_2)$ qui est extrêmement faible (environ 10^{-20} - 10^{-21}m^2). Par conséquent, l'adsorption de gaz a un effet significatif sur la perméabilité. Elle est beaucoup plus faible lorsque le gaz est plus adsorbable. Le gonflement qui résulte de l'adsorption des gaz dans les micropores (et légèrement dans les mésopores) peut conduire à une diminution de la

macroporosité liée à la perte de perméabilité⁹⁹. La différence de perméabilité mesurée avec ces trois gaz résulte de celle de leur capacité d'adsorption.

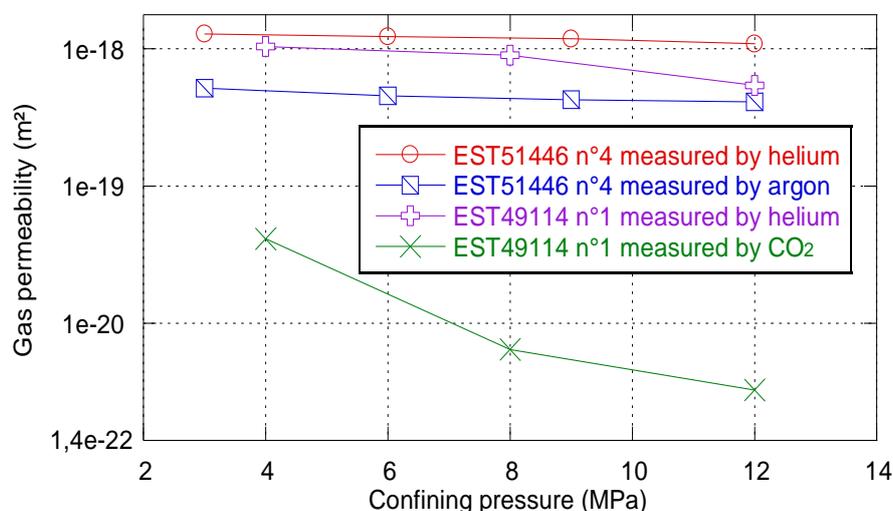


Figure 3.9 - Perméabilité au gaz mesurée par différents types de gaz en fonction de la pression de confinement

(d) Effet de l'adsorption-gonflement sur le comportement d'essai de compression triaxial

Bien que ce ne soit pas l'objectif initial de la présente étude, de nouvelles questions se posent en analysant les résultats obtenus. La première concerne la conséquence mécanique (poro) d'un tel gonflement, c'est-à-dire quel est le coefficient « réel » de Biot lorsqu'il existe un gonflement induit par adsorption de gaz et que l'utilisation de contraintes effective est nécessaire? Par exemple, si des prédictions doivent être faites pour une rupture en essai triaxial conventionnel, quelle serait la pression de confinement effective à utiliser?

Pour répondre partiellement à cette question, nous avons mené une série de tests de compression triaxiale classique sur des échantillons de la cellule T1 EST53642 (voir tableau 3.1). Les essais sont menés avec une cellule auto-compensée, les comparaisons de la contrainte de rupture sous le même niveau de confinement effectif de Terzaghi sont l'objet principal de ces tests.

Les résultats, présentés figure 3.10, montrent que les trois échantillons présentent des caractéristiques de rupture fragile. Il est clair que la pression des pores et le type de gaz ont une influence significative sur celle-ci. Nous observons, d'abord, que la contrainte de rupture de l'échantillon avec $P_c = 8\text{MPa}$, $P_i = 0\text{MPa}$ et l'échantillon avec $P_c = 12\text{MPa}$, $P_i = 4\text{MPa}$ (hélium) est respectivement d'environ 64MPa et 60MPa et sont donc pratiquement identiques. Ceci confirme indirectement que les composantes de Biot sont proches de 1 avec l'hélium. La différence obtenue à la rupture est de 4MPa, mais seulement 2 échantillons ont été testés, nous ne pouvons donc pas commenter cette faible différence. Malgré cela, la valeur inférieure

obtenue avec une pression de pores nous semble logique en raison de l'expansion du gaz dans les fissures (existantes ou induites par la contrainte axiale). Nous avons testé le troisième échantillon avec $P_c=12\text{MPa}$, $P_i=4\text{MPa}$ (CO_2) et la rupture est obtenue à 51MPa . Il est clair que la présence et l'adsorption du CO_2 diminuent la pression de confinement efficace de Terzaghi (P_c-P_i), et/ou induisent un affaiblissement du matériau.

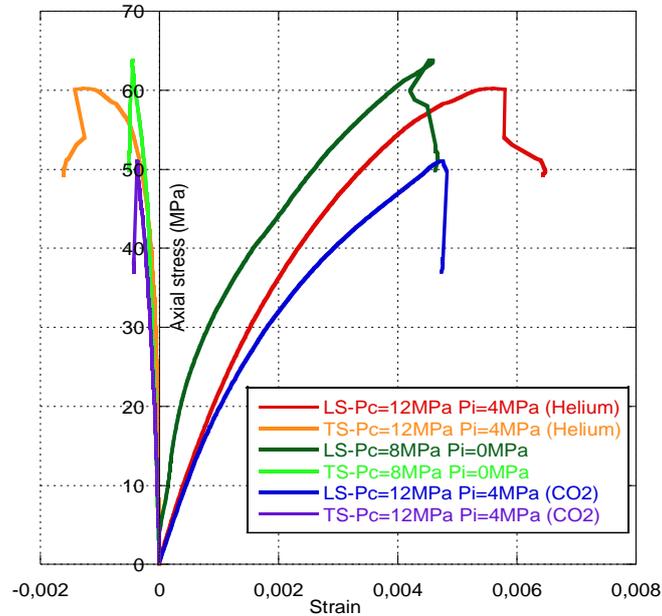


Figure 3.10 - Courbes contrainte-déformation des essais de compression triaxiale sous trois conditions différentes de pression de confinement et de pression des pores (LS représente la contrainte longitudinale, TS représente la contrainte transversale).

3.3 Effets de l'adsorption-gonflement sur l'argilite, comparaison avec d'autres matériaux

Afin d'approfondir l'étude de l'adsorption-gonflement, nous effectuons, dans cette section, une série d'essais comparatifs sur trois matériaux différents, tels que le grès, le mortier et l'argilite. En parallèle, trois types de gaz, tels que l'hélium, l'azote, le CO_2 , sont utilisés pour étudier les différentes capacités d'adsorption de gaz dans ceux-ci. Dans ce contexte, trois séries d'essais sont proposées: adsorption-gonflement, essai perméabilité et essai poromécanique. Trois objectifs sont visés :

- Effet du gaz sur le gonflement
- Effet du gaz sur la perméabilité
- Effet du gaz sur le coefficient de Biot

3.3.1 Préparation des échantillons

Trois matériaux, mortier, grès et argilite sont préparés pour ces essais. Le mortier choisi est un mortier normalisé avec un rapport eau/ciment (W/C) = 0.5, selon la norme EN191-1 sur

les mortiers. Le tableau 3.2 présente la composition du mortier. Ce matériau est déjà largement utilisé dans notre laboratoire pour étudier les propriétés de perméabilité au gaz ou à l'eau, les propriétés mécanique ou poromécanique^{45, 89, 100, 101}. Les échantillons de grès proviennent d'un bloc intact de grès des Vosges. Les échantillons de l'argilite proviennent des cellules T1 EST51446 et EST51335 fournies par l'Andra. Les dimensions des échantillons du mortier et du grès sont d'environ 37mm*70mm, mais celles des échantillons de l'argilite sont de 20mm*40mm comme précédemment. Tous les échantillons sont séchés en étuve jusqu'à la stabilisation de la masse. Puis, finalement, deux jauges croisées sont collées sur la surface des échantillons.

Tableau 3.2 - Composition du mortier normalisé dans cette étude

Ingredient	Quantity (kg)
Cement CEM II/B-M(LL-S) 32.5R	450
Normalized sand (from Leucate, France)	1350
Tap water	225
Water/cement ratio	0.5

3.3.2 Méthode expérimentale

3.3.2.1 Programme expérimental

Les essais de comparaison sont complexes et prennent beaucoup de temps, il faut donc optimiser le protocole. Pour chaque matériau, trois types d'essai doivent être effectués pour trois types de gaz. Pour diminuer les effets croisés entre les différents gaz et les différents essais, nous effectuons les essais dans l'ordre suivant : adsorption-gonflement, perméabilité et poromécanique. Pour chaque essai, compte tenu des différentes capacités d'adsorption des trois gaz, l'ordre d'utilisation des trois gaz est le suivant : hélium, azote et CO₂. Pour l'essai de d'adsorption-gonflement et de perméabilité, les pressions de confinement sont fixées à 12 MPa (comme pour l'argilite in-situ), les pressions de gaz croissent de 1MPa à 4MPa avec un pas de $\Delta P_i = 1\text{MPa}$. La pression finale du gaz est limitée à une pression relative de 4MPa afin d'éviter que la microstructure ne soit modifiée suite à une pression de pores trop élevée qui pourrait influencer les essais poromécaniques. De plus, il faut un temps d'attente suffisant pour chaque étape de chargement en pression. Pour l'essai poromécanique, le coefficient de Biot est mesuré dans trois conditions de charge: $P_c = 8\text{MPa}$, $P_i = 2\text{MPa}$; $P_c = 12\text{MPa}$, $P_i = 2\text{MPa}$ and $P_c = 12\text{MPa}$, $P_i = 4\text{MPa}$. On trouvera plus de détails dans le tableau 3.3.

Tableau 3.3 - Le programme expérimental du test de comparaison

Matériau	Type de l'essai	Programme de chargement	Type du gaz
Mortier	L'essai de l'adsorption-gonflement	$P_c=12\text{MPa}$, $P_i=1, 2, 3, 4\text{MPa}$	L'hélium, l'azote et CO ₂
	L'essai perméabilité		
	L'essai poromécanique	$P_c=8\text{MPa}$, $P_i=2\text{MPa}$; $P_c=12\text{MPa}$, $P_i=2\text{MPa}$; $P_c=12\text{MPa}$, $P_i=4\text{MPa}$	
Grès	L'essai de l'adsorption-gonflement	$P_c=12\text{MPa}$, $P_i=1, 2, 3, 4\text{MPa}$	
	L'essai perméabilité		
	L'essai poromécanique	$P_c=8\text{MPa}$, $P_i=2\text{MPa}$; $P_c=12\text{MPa}$, $P_i=2\text{MPa}$; $P_c=12\text{MPa}$, $P_i=4\text{MPa}$	
Argilite	L'essai de l'adsorption-gonflement	$P_c=12\text{MPa}$, $P_i=1, 2, 3, 4\text{MPa}$	
	L'essai perméabilité		
	L'essai poromécanique	$P_c=8\text{MPa}$, $P_i=2\text{MPa}$; $P_c=12\text{MPa}$, $P_i=2\text{MPa}$; $P_c=12\text{MPa}$, $P_i=4\text{MPa}$	

3.3.2.2 Dispositif expérimental

Les essais de comparaison sont réalisés avec un appareil conçu dans notre laboratoire (cf. figure 3.11). L'appareil se compose principalement d'une cellule hydrostatique, d'un système de mise en pression d'huile, d'un système d'injection de gaz et d'un système d'acquisition de données. Deux cellules hydrostatiques sont utilisées pour la série d'essais selon les différentes tailles d'échantillon. Comme trois types de gaz sont utilisés pour les essais, la pression d'injection de gaz est fournie par trois réservoirs de gaz contenant respectivement de l'hélium, de l'azote et du CO₂. Au cours du processus d'injection, la pression d'injection de gaz est surveillée en permanence par un transducteur de pression avec la précision de 0.001 MPa, et les données de pression sont fournies par le logiciel *Control Center Serie 30* permettant d'enregistrer les pressions et les températures au cours du temps. Comme décrit dans les chapitres précédents, nous plaçons l'appareil dans une pièce à température climatisée à 20°C afin de s'approcher d'une température constante pour l'essai.

Comme décrit dans la première partie, nous débutons notre campagne d'essai par ceux de l'adsorption-gonflement à l'hélium, l'azote et le CO₂. L'essai perméabilité a été mené par la suite en démontant la valve au-dessus de la cellule et en la remplaçant par un débitmètre (comme décrit dans la section 3.2.2). Lorsque ces deux essais sont terminés, l'essai

poromécanique est effectué pour les trois gaz pour le même échantillon. Tous les essais sont effectués dans une chambre climatisée à environ 20°C.

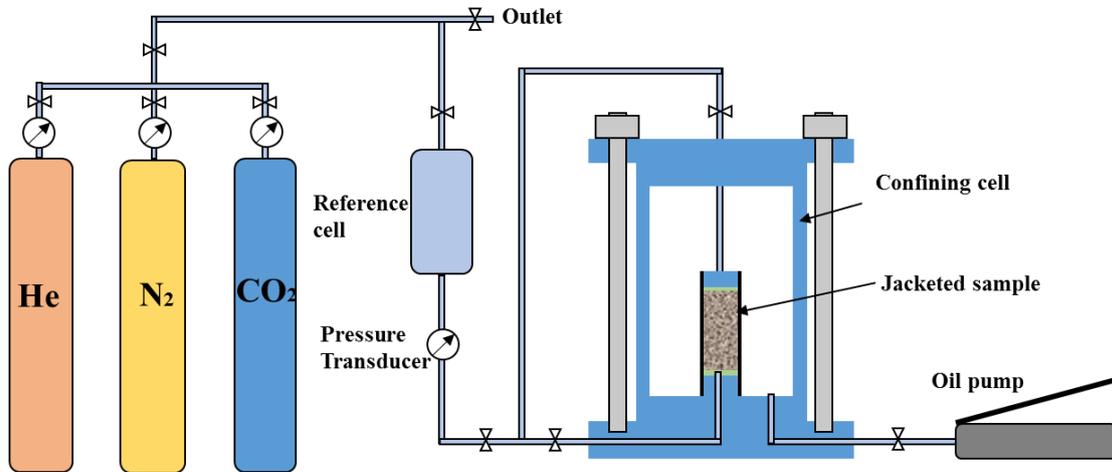


Figure 3.11 - Schéma de principe du dispositif des essais de comparaison

3.3.2.3 Mesures et calcul d'adsorption et gonflement

(a) Mesures de porosité à l'hélium

Étant donné que l'hélium est un gaz presque non-adsorbant et que son diamètre est très petit (environ 0.26 nm), il est choisi comme gaz privilégié pour mesurer la porosité des milieux poreux par beaucoup d'auteurs¹⁰²⁻¹⁰⁴. La méthode de mesure de la porosité à l'hélium est la même que celle permettant de mesurer le volume de pores accessible à différentes conditions de HR, ce qui est décrit dans le deuxième chapitre. Le volume des pores accessibles pour l'hélium peut être écrit comme suit:

$$V_p = \frac{P_{inj} V_r}{P_{pore}} - (V_r + V_t) \quad (3.2)$$

où V_r est le volume de tampon référence, V_t est le volume de tube entre l'échantillon et le tampon et du volume des pores accessibles pour l'hélium d'échantillon V_p . P_{inj} est la pression d'injection initiale, P_{pore} est la pression finale après que l'équilibre.

Par conséquent, la porosité ϕ_{He} se déduit du volume de l'échantillon V_{sample} et de celui des pores V_p comme suit:

$$\phi_{He} = \frac{V_{pore}}{V_{sample}} \quad (3.3)$$

(b) Mesures d'adsorption

Les essais de mesure d'adsorption sont réalisés en suivant les mêmes procédures que celles des essais de porosité à l'hélium. La pression d'injection de gaz et la pression de confinement sont inchangées (voir tableau 3.3). Les deux essais diffèrent par la méthode de

calcul. Au cours de l'adsorption, du gaz est injecté de la cellule de référence vers l'échantillon, la pression du gaz va diminuer en raison du remplissage du volume des pores et de l'adsorption. Par conséquent, pour chaque étape d'injection de gaz, on peut obtenir une équation de bilan de masse (ou de moles), et la quantité d'adsorption de Gibbs (également appelée adsorption en excès) peut être calculé directement par l'équation⁹⁷:

$$n_m = \frac{P_{inj}V_r}{RT} - \frac{P_{pore}(V_r+V_t+V_p)}{RT} \quad (3.4)$$

où n_m est la quantité adsorbée de Gibbs en moles; R est la constante universelle des gaz parfaits et T est la température.

La quantité d'adsorption de Gibbs néglige le volume occupé par la phase adsorbée dans le calcul de la quantité de gaz adsorbé. Sur la base de la quantité d'adsorption de Gibbs, l'adsorption absolue est estimée en utilisant l'équation^{97, 98, 105}:

$$n_{abs} = \frac{n_m}{1 - \frac{p}{p_{abs}}} \quad (3.5)$$

où n_{abs} est la quantité d'adsorption absolue et p_{abs} est la densité de la phase adsorbée. Dans notre étude, nous utilisons le montant d'adsorption absolue pour évaluer la capacité d'adsorption potentielle d'azote et de CO₂ dans l'argilite.

(c) Mesures de gonflement

Au cours de l'étape d'injection de chacun des gaz (hélium, azote ou CO₂), les déformations transversales et longitudinales sont enregistrées simultanément par des jauges. Les déformations causées par l'injection d'hélium sont considérées comme l'état de référence, ce qui permet le calcul de la déformation de l'adsorption-gonflement causée par l'azote ou le CO₂ comme suit:

$$\varepsilon_{swelling} = \varepsilon_{N_2 \text{ or } CO_2} - \varepsilon_{helium} \quad (3.6)$$

3.3.3 Résultats et analyses

3.3.3.1 Porosité à l'hélium

La figure 3.12 présente les résultats de la porosité à l'hélium. Nous observons que la porosité mesurée des trois matériaux augmente légèrement à mesure que la pression de gaz varie de 1MPa à 4MPa, à pression hydrostatique constante $P_c=12\text{MPa}$. Cela signifie que le nombre de pores dans lesquels le gaz peut pénétrer, croît avec l'augmentation de la pression du gaz. La porosité du grès et du mortier est évidemment grande que celle de l'argilite. Par exemple, la porosité du grès est environ de 18% - 19%, et la porosité du mortier est de 17%, tandis que la porosité de l'argilite testée ici est assez faible et se situe entre 14.5% et 15%.

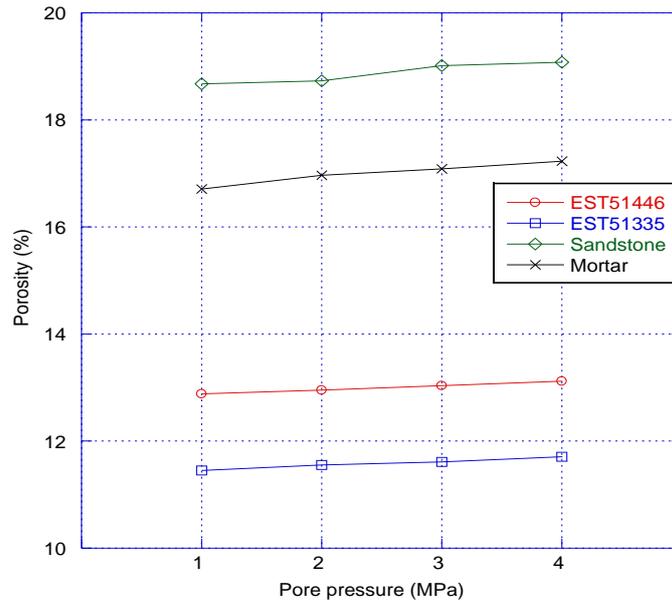


Figure 3.12 - Porosité à l'hélium par rapport à la pression du gaz à $P_c=12\text{MPa}$

3.3.3.2 L'adsorption

Les isothermes d'adsorption absolue d'azote et de CO_2 pour les trois matériaux sont obtenues en utilisant l'équation du bilan de masse. L'adsorption de Gibbs et la masse d'adsorption absolue peuvent être calculées avec les relations (3.4) et (3.5). Nous avons pris comme densités absolues d'azote et de CO_2 0.808 g/ml et 1.18 g/ml à température ambiante. La figure 3.13 présente les résultats. Nous notons que les quantités absolues d'adsorption du mortier et de l'argilite sont positives et que ces quantités augmentent avec la pression de gaz (sauf pour le mortier injecté d'azote). Au contraire, les quantités absolues d'adsorption pour le grès sont négatives et ceci pour les deux gaz. Ces résultats indiquent que l'azote et le CO_2 sont adsorbables dans le mortier et l'argilite, mais pas dans le grès. C'est assez logique car l'adsorption est significative dans les micropores et présente (dans une moindre mesure) dans les mésopores. C'est la surface spécifique des vides qui pilote les quantités adsorbées. Le grès ne contient que des macropores donc de surface spécifique trop petite pour qu'on puisse y déceler de l'adsorption. Le mortier contient des mésopores et a priori un peu de microporosité dans les hydrates. Ceci explique qu'on peut y adsorber un peu de gaz. L'argilite est riche en micropores et mésopores, donc a une capacité d'adsorption significative qui augmente avec la pression d'injection. Nous confirmons aussi que le CO_2 a une capacité d'adsorption plus forte que celle de l'azote. Par exemple, la quantité absolue d'adsorption du CO_2 dans l'échantillon EST51446-1 est 0.124 mmol/g pour une pression de pore de 4MPa, alors que cette valeur est 0.029mmol/g pour l'azote pour la même pression. Un phénomène identique est également observé dans le charbon et le schiste^{64, 106}. Nous pouvons aussi observer que les isothermes d'adsorption pour les deux échantillons suivent la tendance typique d'une isotherme

d'adsorption de type Langmuir^{107, 108}. D'autres expériences devraient cependant être menées pour étudier plus en détail les paramètres de Langmuir mais cela va au-delà de ce travail.

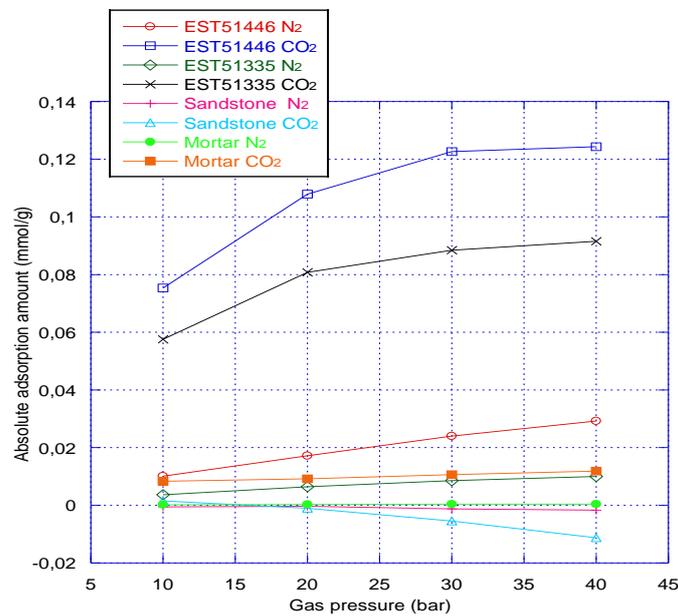
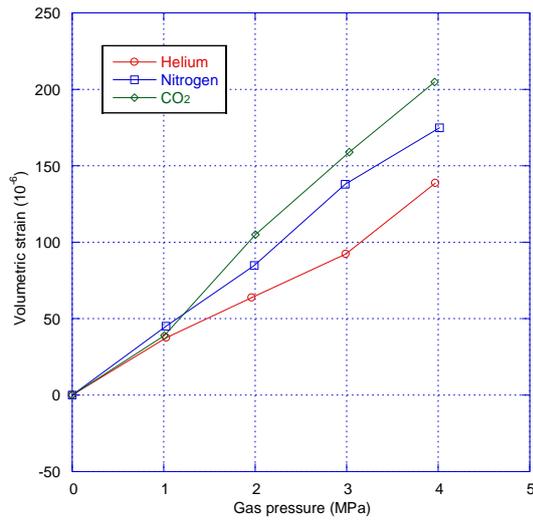


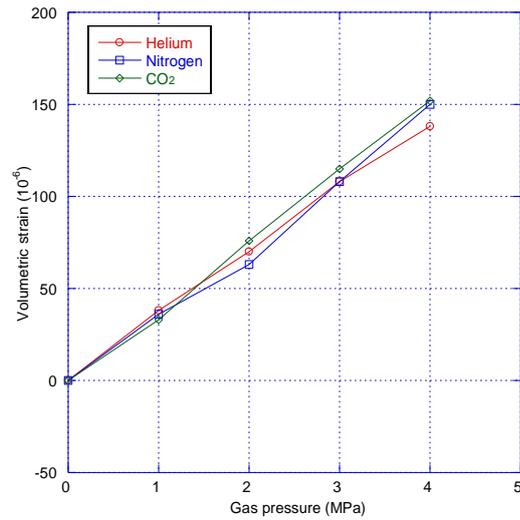
Figure 3.13 - Les résultats des isothermes d'adsorption absolue d'azote et de CO₂

3.3.3.3 Le gonflement

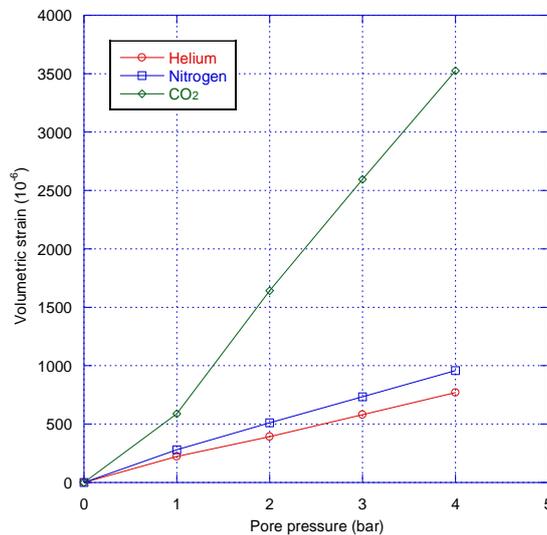
L'étude sur l'adsorption dans le mortier, le grès et l'argilite décrite auparavant, s'est poursuivie par l'évaluation de la déformation induite par ce phénomène. La figure 3.14 donne la variation de volume des trois matériaux suite à l'injection d'hélium, d'azote ou de CO₂. Nous considérons la déformation de gonflement comme une valeur positive, ce qui est largement accepté dans la littérature pour le gonflement induit par le gaz^{69, 109}. La figure 3.15 met en évidence l'expansion croissante des trois matériaux avec la pression du gaz ce qui n'est rien d'autre (usuellement) qu'un effet classique poromécanique. Si on prend comme base l'expansion due à l'hélium en la supposant purement poromécanique, puisque sans adsorption, on peut voir que le grès ne subit aucun gonflement parasite (ceci est parfaitement conforme avec l'absence d'adsorption). Pour le mortier on a un gonflement réel dû à l'adsorption. Cet aspect est très intéressant même s'il dépasse le cadre de ce travail et il devrait être creusé pour la vapeur d'eau. En effet les cycles de sorption-désorption de vapeur d'eau pour les matériaux cimentaires s'accompagnent de gonflement et de retrait, bien souvent modélisés par la variation de la pression capillaire. Les mesures présentées ici, mêmes partielles, semblent indiquer que la désorption de vapeur peut participer significativement au retrait de dessiccation. Pour l'argilite la déformation volumétrique causée par l'injection de CO₂ est beaucoup plus grande que la déformation volumétrique causée par l'injection de l'azote elle-même légèrement supérieure à celle de l'hélium. Tout ceci est conforme aux résultats présentés auparavant.



(a) Le mortier



(b) Le grès



(c) L'argilite

Figure 3.14 - La déformation volumétrique des trois matériaux induite par l'injection de gaz

La figure 3.15 présente les parties longitudinale et transversale du gonflement obtenues suite à l'injection d'azote ou de CO₂. Il est net que le gonflement induit par l'adsorption met en lumière les caractéristiques anisotropes. C'est aussi le cas pour l'expansion purement pomécanique issue de l'injection d'hélium même si au bilan elle débouche sur des coefficients de Biot identiques pour les deux directions. Comme le montre la figure 3.15, la déformation transversale causée par l'adsorption de CO₂ est deux fois plus grande que la déformation longitudinale lorsque la pression du gaz est de 4MPa. Ces caractéristiques de gonflement d'adsorption anisotrope peuvent résulter de la structure isotrope transversale de l'argilite (car le plan de litage de l'échantillon est parallèle à la direction longitudinale). La figure 3.15 montre également que la déformation induite par le CO₂ est supérieure à la

déformation induite par l'azote dans les deux directions. Les différentes capacités de d'adsorption de ces deux gaz en sont a priori la cause première.

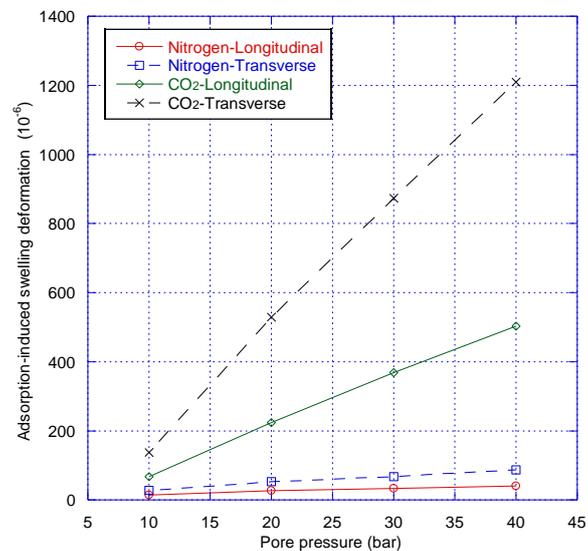
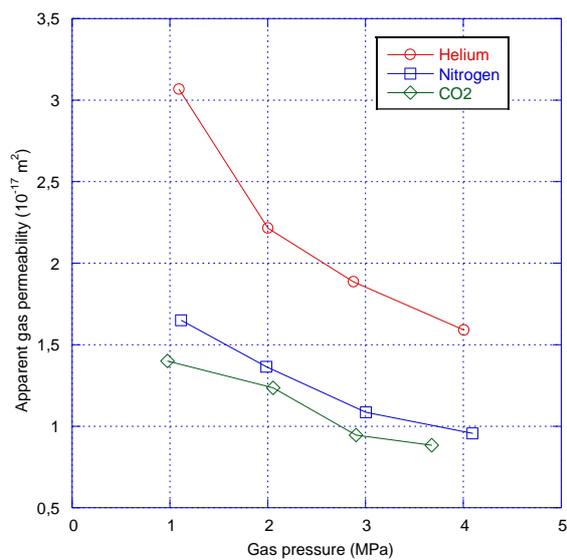


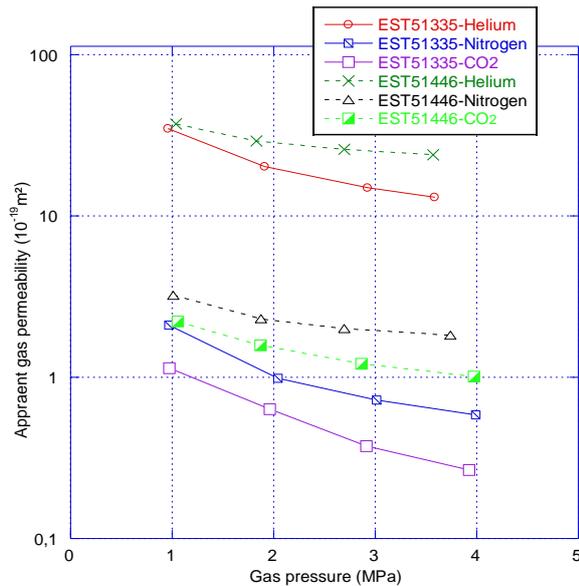
Figure 3.15 - La déformation de l'adsorption-gonflement de l'échantillon d'argilite de la cellule T1 EST51335 en fonction de la pression de gaz d'injection

3.3.3.4 Effets sur la perméabilité

Selon les mesures effectuées dans notre laboratoire, la perméabilité au gaz de ce type de grès est beaucoup plus élevée que pour celle du mortier et de l'argilite. L'absence d'adsorption pour cette roche ne nécessite pas d'approfondir plus loin pour cette roche. Nous n'avons donc mesuré la perméabilité que pour le mortier et l'argilite. La figure 3.16 présente les résultats obtenus sur deux carottes d'argilite et sur le mortier soumis à écoulement d'hélium, d'azote et de CO₂. On peut observer que la perméabilité au gaz du mortier est d'environ 10⁻¹⁷m², tandis que celle de l'argilite est d'environ 10⁻¹⁸m² -10⁻¹⁹m². De la figure 3.17 (a) et (b), nous pouvons observer qu'aussi bien pour le mortier que pour l'argilite, $K(\text{hélium})$ est toujours la plus élevée tandis que $K(\text{azote})$ et $K(\text{CO}_2)$ sont plus faibles et suivent les capacités d'adsorption. Plus cette capacité est grande, plus la perméabilité est petite. On n'a pas en revanche de différences considérables liées au fait que le CO₂ s'adsorbe beaucoup plus et provoque plus de gonflement que l'azote. L'espace -poreux est réduit par l'adsorption (comme le montre la figure 3.17) donc la perméabilité décroît avec celle-ci^{93, 97}. Dans la diminution de perméabilité, présente pour les trois gaz, avec l'augmentation de pression, il y a deux effets qui se cumulent/ l'effet Klinkenberg (seul présent pour l'hélium) et l'effet de l'adsorption et l'augmentation du nombre de couches adsorbées. Il y a donc un couplage entre l'effet Klinkenberg et l'effet d'adsorption^{42, 110}.



(a) Le mortier



(b) L'argilite

Figure 3.16 - La déformation volumétrique des trois matériaux induite par l'injection de gaz

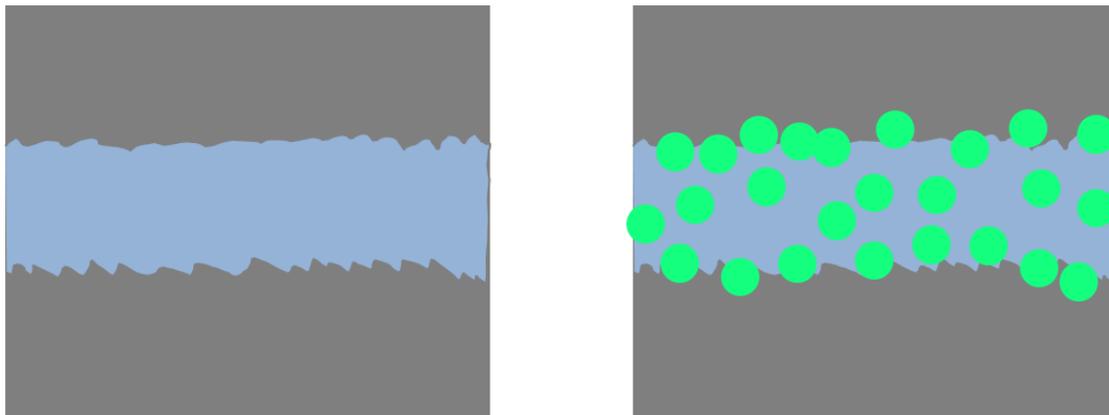


Figure 3.17 - La diagramme schématique du gaz adsorbable transport dans les micropores ou mesopores

La figure 3.16 montre que la perméabilité au gaz des deux matériaux diminue avec l'augmentation de la pression du gaz, c'est un phénomène usuel qui s'appelle l'effet Klinkenberg⁴¹. Plus la taille des molécules ou des pores est faible (devant le libre parcours moyen des molécules de gaz), plus le gaz glisse à la surface des pores, donc cet effet s'atténue avec l'augmentation de la pression de gaz. Une relation linéaire entre la perméabilité apparente et intrinsèque a été proposée par Klinkenberg:

$$K_{app} = K_{int} \left(1 + \frac{\beta}{P_m}\right) \quad (3.7)$$

où K_{int} est la perméabilité intrinsèque, P_m est la pression moyenne du gaz, et β est le coefficient de Klinkenberg dépendant du chemin libre moyen de la molécule, du rayon de la gorge des pores et de la pression moyenne du gaz.

Afin d'étudier l'effet Klinkenberg induit par les trois gaz nous utilisons la relation (3.7). Les résultats sont présentés figure 3.18, et les paramètres d'ajustement se trouvent dans le tableau 3.4. Nous remarquons que les résultats en perméabilité intrinsèque donnent un nouvel éclairage. Pour le mortier l'azote et le CO_2 donnent finalement une perméabilité « intrinsèque » très légèrement plus faible qu'avec l'hélium. Le gonflement et l'occupation des micropores par le gaz ont peu d'effet sur la perméabilité intrinsèque. Pour l'argilite on perd un ordre de grandeur de perméabilité à chaque changement de gaz. En outre, nous pouvons également remarquer que $K_{int}(CO_2)$ est extrêmement faible, $K_{int}(hélium)$ est relativement élevé, tandis que $K_{int}(azote)$ représente une valeur intermédiaire. Ceci est lié à l'effet d'adsorption, les molécules de gaz adsorbables peuvent être adsorbées et glisser sur la surface des pores, ces effets de couplage ont réduit la capacité de transport de gaz. La relation de Klinkenberg paraît pouvoir être utilisée pour traduire l'effet de la pression d'injection sur la perméabilité apparente mais il est clair qu'elle reste insuffisante pour établir un modèle de perméation impliquant le phénomène d'adsorption.

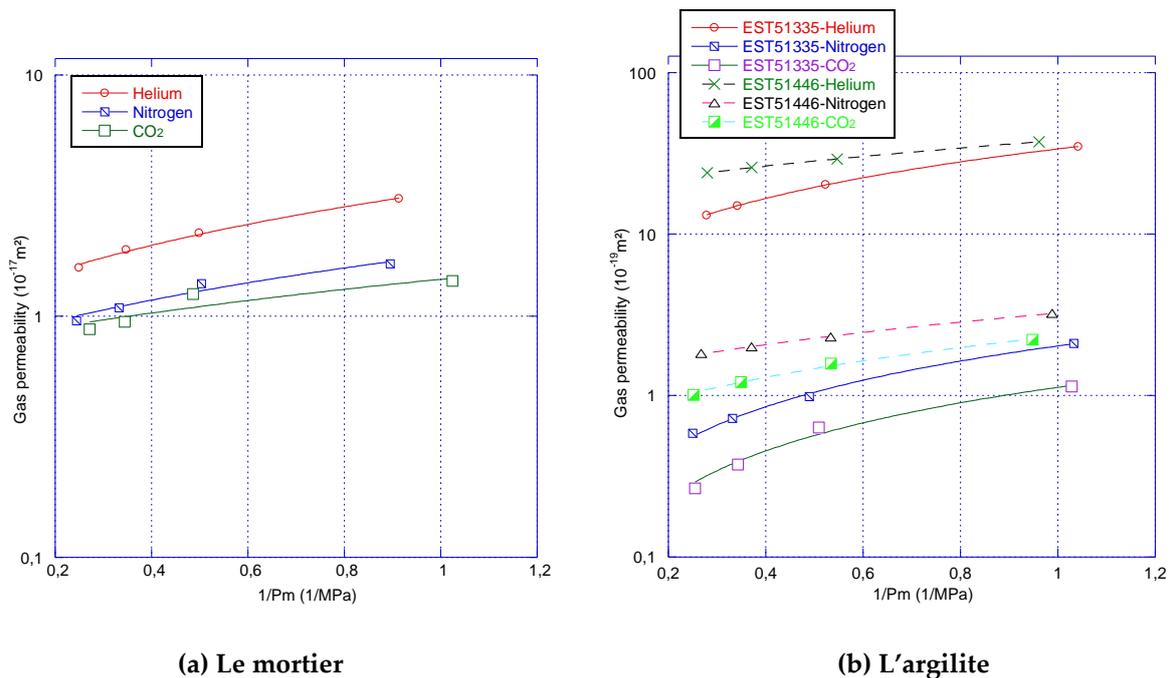


Figure 3.18 - Ajustement de la perméabilité initiale au gaz par l'équation de Klinkenberg

Tableau 3.4 - Paramètres d'ajustement des équations de Klinkenberg

Type d'échantillon	Type du gaz	b	K_{int} (m ²)	R ²
Mortier	Hélium	1.99	1.09×10^{-17}	0.998
	Azote	1.40	7.47×10^{-18}	0.980
	CO ₂	0.85	7.69×10^{-18}	0.911
L'argilite de cellule T1 EST51335	Hélium	5.41	5.26×10^{-19}	1.000
	Azote	29.13	6.74×10^{-20}	1.000
	CO ₂	172.31	6.49×10^{-21}	0.995
L'argilite de cellule T1 EST51446	Hélium	1.05	1.86×10^{-18}	1.000
	Azote	1.53	1.28×10^{-19}	1.000
	CO ₂	2.84	6.07×10^{-20}	0.998

3.3.3.5 Le coefficient de Biot

Les résultats des mesures sur les composantes du tenseur de Biot sont regroupés dans le tableau 3.5. Les résultats sont également présentés dans la figure 3.19 (a), 3.19 (b) et 3.19 (c). Il apparaît que quel que soit le matériau on a toujours une anisotropie plus ou moins marquée. On peut difficilement déceler pour le mortier et le grès un effet net qui serait dû à l'adsorption, surtout en l'absence d'une étude plus systématique qui n'est pas l'objectif de ce travail. Les phénomènes sont très différents pour l'argilite pour laquelle on a d'abord un effet systématique du gaz injecté. Avec l'hélium on retrouve des composantes pratiquement égales à 1. L'emploi de l'azote dont on avait déjà souligné les effets sur le gonflement et la perméabilité aboutit systématiquement à des composantes apparentes (un peu) supérieures à 1 mais sans effet notable du confinement ou de la pression d'injection. L'utilisation du CO₂ peut être qualifié de spectaculaire, il est dû au « sur-gonflement » engendré par l'adsorption. Les effets d'anisotropie sont clairement mis en lumière. L'augmentation du confinement semble conduire à une limitation du gonflement donc à un coefficient de Biot apparent plus faible tandis qu'à confinement fixé (ici 12MPa) l'augmentation de la pression de pore induit un coefficient de Biot plus grand. Ceci signifierait que plus de gaz s'adsorbe dans ce cas et conduit à plus de gonflement. De fait, ces composantes apparentes ne sont pas des propriétés purement poroélastiques, car elles sont superposent deux phénomènes distincts: l'expansion due à la pression de pore et le gonflement dû à l'adsorption. De là, un nouveau modèle promécanique qui prend en compte ces deux types de déformations devrait être construit.

Les résultats prouvent afin que les effets de gonflement induits par l'adsorption ne doivent pas être ignorés dans le processus de transport (ou dans la réponse poromécanique) lorsque des gaz adsorbables pénètrent dans de l'argilite ou d'autres roches argileuses. Il faut cependant souligner que ces expérimentations sont indicatrices du comportement du matériau sec ce qui est éloigné du cas in-situ.

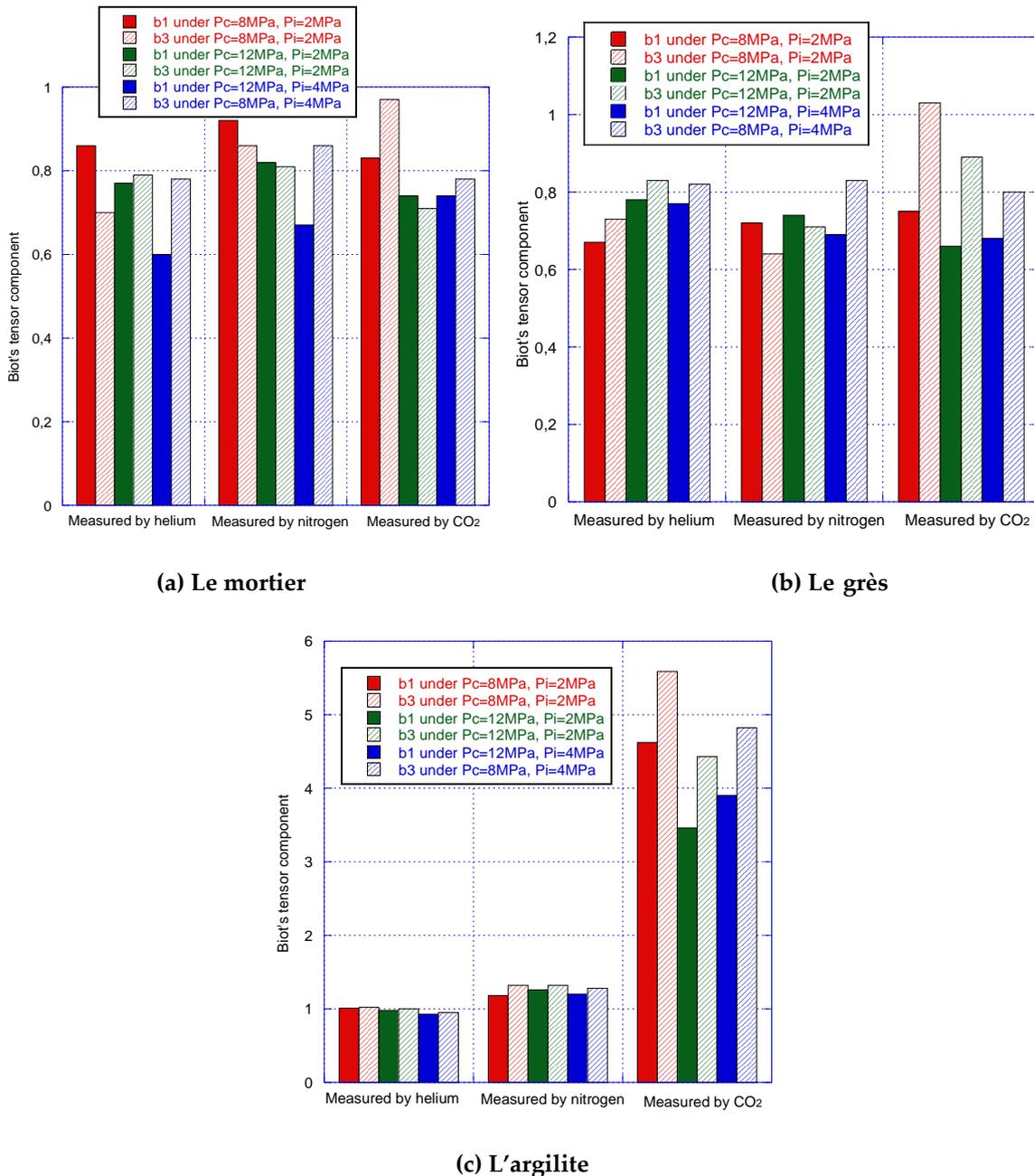


Figure 3.19 - Les composantes du tenseur de Biot de trois matériaux mesurés sur différents P_c et P_i pour différent type de gaz

Table 3.5 - Les résultats des composantes de tenseur de Biot de trois matériaux

Type d'échantillon	Type du gaz	P_c (MPa)	P_i (MPa)	Les composantes du tenseur de Biot	
				b_1	b_3
Mortier	Hélium	8	2	0.86	0.70
		12	2	0.79	0.77
		12	4	0.60	0.78
	Azote	8	2	0.92	0.86
		12	2	0.81	0.82
		12	4	0.67	0.86
	CO ₂	8	2	0.83	0.97
		12	2	0.71	0.74
		12	4	0.74	0.78
Grès	Hélium	8	2	0.67	0.73
		12	2	0.78	0.83
		12	4	0.77	0.82
	Azote	8	2	0.72	0.64
		12	2	0.74	0.71
		12	4	0.69	0.83
	CO ₂	8	2	0.75	1.03
		12	2	0.66	0.89
		12	4	0.68	0.80
Argilite	Hélium	8	2	1.01	1.02
		12	2	0.98	1.00
		12	4	0.93	0.95
	Azote	8	2	1.18	1.32
		12	2	1.26	1.32
		12	4	1.20	1.28
	CO ₂	8	2	4.62	5.59
		12	2	3.46	4.43
		12	4	3.90	4.82

3.4 Conclusion

L'objectif principal de ce chapitre était d'approfondir la compréhension sur les mesures des composantes du tenseur de Biot qui dépassaient l'unité quand on utilise certains gaz adsorbables. Ce phénomène est principalement visible sur le matériau sec ou peu saturé. Cela a permis d'enrichir les expérimentations précédentes par de nouvelles plus axées sur l'adsorption des gaz dans l'argilite. Une première série de tests comparatifs argon/hélium a nettement montré que les composantes du tenseur de Biot (sur matériau sec) mesurées par

l'argon sont supérieures à l'unité quelles que soient les conditions: pression de confinement différente et pression des pores. Ce phénomène est absent avec l'hélium. Ces résultats, conformes aux résultats du chapitre 2 ont renforcé l'hypothèse d'un gonflement dû à l'adsorption. La deuxième série de tests, plus complète, a été menée avec trois gaz (hélium, argon et CO₂) et elle a impliqué des essais poromécaniques et des essais de perméabilité au gaz. Les résultats sont probants : la perméabilité au CO₂ se révèle beaucoup plus faible (environ 10⁻²⁰-10⁻²¹m²) que celle obtenue avec de l'hélium (environ 10⁻¹⁸-10⁻¹⁹m²). La perméabilité à l'argon est intermédiaire. Il s'ensuit que la capacité d'adsorption du gaz affecte de manière significative la perméabilité au gaz car le gonflement induit conduit à une diminution de l'espace poreux. L'évaluation objective de la perméabilité au gaz de l'argilite doit impérativement prendre en compte ce phénomène qui peut déboucher sur des biais considérables quant à sa valeur.

L'adsorption/gonflement fait perdre à la perméabilité son caractère intrinsèque avec ici 2 à 3 ordres de grandeur de différence selon les gaz. Il nous semble donc particulièrement important pour l'argilite de mener des essais de perméabilité avec des gaz identiques à ceux qui seront produits lors du stockage. C'est en particulier le cas de l'hydrogène pour lequel nous préconisons quelques comparaisons avec l'hélium pour vérifier si ce gaz a ou non des capacités d'adsorption dans l'argilite.

Les essais poromécaniques complémentaires ont confirmé que les composantes du tenseur de Biot mesurés à l'hélium sont proches de 1. Les valeurs des mêmes composantes tournent autour de 1.2 lorsqu'elles sont mesurées à l'argon, gaz faiblement adsorbant. L'emploi du CO₂ débouche sur une forte (et nouvelle) anisotropie sur les deux composantes apparentes du tenseur de Biot: $b_1 = 2.5$ et $b_3 = 4.8$. Contrairement aux précédentes mesures avec des gaz peu ou pas adsorbables, ces nouveaux résultats montrent le gonflement dû à l'adsorption à une tendance à amplifier l'anisotropie naturelle du matériau.

La confrontation avec d'autres matériaux, à porosité moins fine, tels que le grès ou le mortier, indique là encore la présence d'une légère adsorption. Les conséquences en sont cependant bien moins aiguës que sur un matériau argileux.

Chapitre 4 Etude expérimentale des propriétés de transfert de gaz dans l'argilite au cours de phases de séchage/imbibition

4.1 Introduction

Avec les propriétés poroélastiques de l'argilite partiellement saturée, il est important d'étudier ses propriétés de transfert de gaz. De fait, il existe beaucoup d'études sur ce sujet, dont un bon nombre réalisé par notre laboratoire. En revanche, il existe peu d'études sur ces propriétés au cours de phases de séchage ou d'imbibition. Cet aspect est important car l'argilite entourant les tunnels (EDZ zone) est soumise à ce processus. Ce chapitre présente des séries d'essais sur la perméabilité au gaz et sur le volume de pore d'échantillons endommagés par des cycles d'imbibition ou des cycles de séchage. La méthode expérimentale, développée dans notre laboratoire, permet de mesurer la perméabilité au gaz et le volume de pores, sous un certain confinement, de façon simultanée. Dans ce chapitre, tout d'abord, la différence saturation en eau de l'argilite est étudiée pour des échantillons soumis à une HR croissante puis décroissante. Les effets de ces deux variations d'HR et celui du confinement sont discutés plus en détail à la fin de ce chapitre.

4.2 Préparation des échantillons

Les échantillons utilisés dans cette étude ont été prélevés sur des carottes de 80 mm de diamètre et 300 mm de longueur elles-mêmes extraites de prélèvements horizontaux dans l'URL. Les carottes sont fournies par l'Andra sous formes de cellules T1 (cf. figure 4.1). Dès qu'elle est extraite, une cellule T1, est scellée dans un tube en plastique et confinée par un mécanisme de tiges filetées et ressorts afin de conserver l'échantillon au plus près de son état d'origine (état de contrainte et teneur en eau). Malgré ces précautions, des macro-fissures ont souvent été observées à l'ouverture des cellules. Ces macro-fissures initiales peuvent être dues à la phase d'extraction in-situ ou aux perturbations inévitables en travail de laboratoire. Aussi, afin d'éviter l'impact de ces macro-fissures et de réduire les temps d'essai, nous avons utilisé des échantillons de petite taille, environ 20 mm de diamètre et 24 mm à 30 mm de longueur. Ces échantillons sont usinés (à sec) dans notre laboratoire par une carotteuse et une tronçonneuse à fil. Le tableau 4.1 ci-dessous donne un aperçu des échantillons testés et la nature des essais réalisés. On pourra y voir que l'ensemble des manipulations perturbe notablement la saturation d'échantillons aussi petits.



(a) Référence de la cellule T1



(b) Etat original d'une cellule T1

Figure 4.1 - Cellule T1 - EST56033

Tableau 4.1 - Résumé des essais effectués et référence des échantillons utilisés

Réf. de l'échantillon	Dimensions (mm)		Saturation initiale (%)	Densité (g / cm ³)	Phase de imbibition/séchage
	Diamètre	Hauteur			
EST51335-3	19.56	23.24	60.15	2.37	Phase de séchage
EST51335-5	19.52	29.79	73.29	2.35	
EST51335-6	19.48	26.74	66.15	2.33	
EST56033-4	19.62	24.52	66.96	2.37	Phase d'imbibition
EST56033-5	19.65	24.52	64.87	2.36	

4.3 Méthodologie expérimentale

4.3.1 Protocole expérimental

Nous avons réalisé deux séries d'essais pour étudier les propriétés de transfert de gaz de l'argilite au cours d'un cycle de séchage/imbibition. La première série concerne l'évolution de la perméabilité au gaz (K_g) et le volume de pore accessible au gaz (\emptyset_{gaz}) au cours d'une phase de séchage. En parallèle, la deuxième série d'essais concerne l'évolution de K_g et \emptyset_{gaz} au cours d'une phase d'imbibition. Les protocoles expérimentaux de ces deux phases sont repris dans les figures 4.2 et 4.3. Pour observer un large intervalle de saturation, 6 paliers d'humidité relative (0 %, 11 %, 59 %, 85 %, 92 % et 98 %) ont été utilisés. Pour la phase de séchage nous

avons préféré commencer au palier HR = 92 % afin d'éviter une possible fissuration avec le palier HR = 98 %²⁴. Les isothermes de sorption/désorption peuvent aussi être obtenues par la suite.

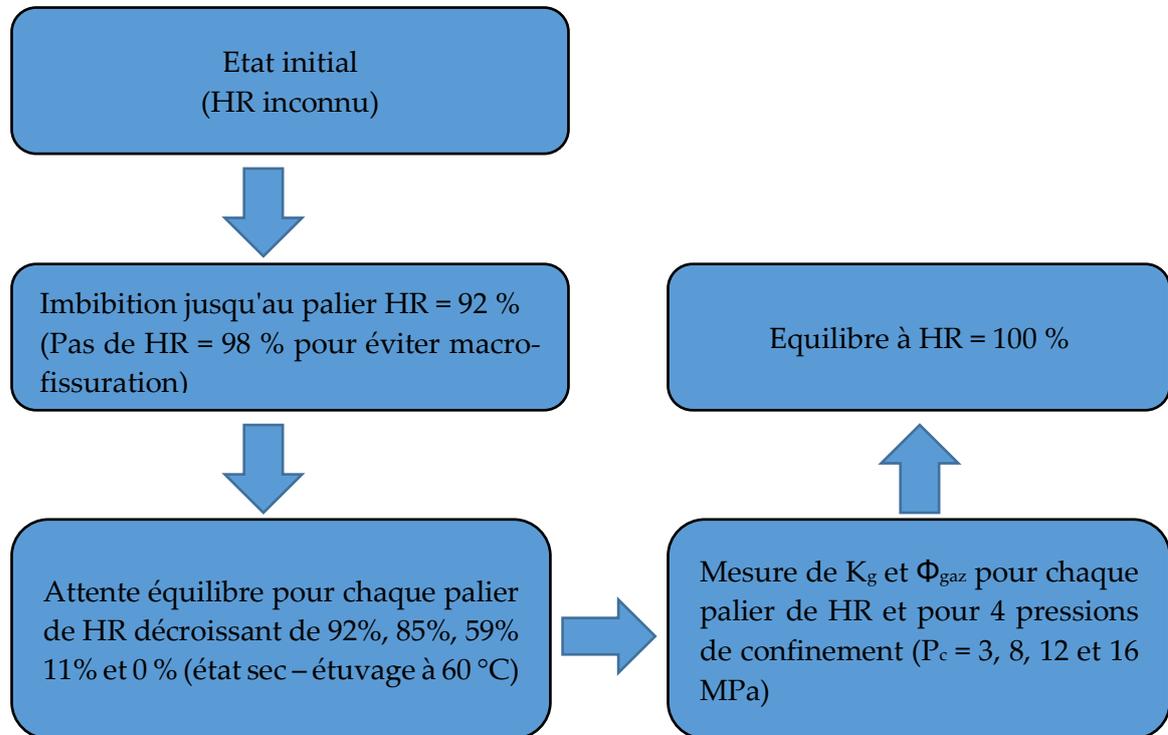


Figure 4.2 - Protocole expérimental de la phase de séchage des échantillons de la cellule T1 EST51335 utilisés dans ces essais

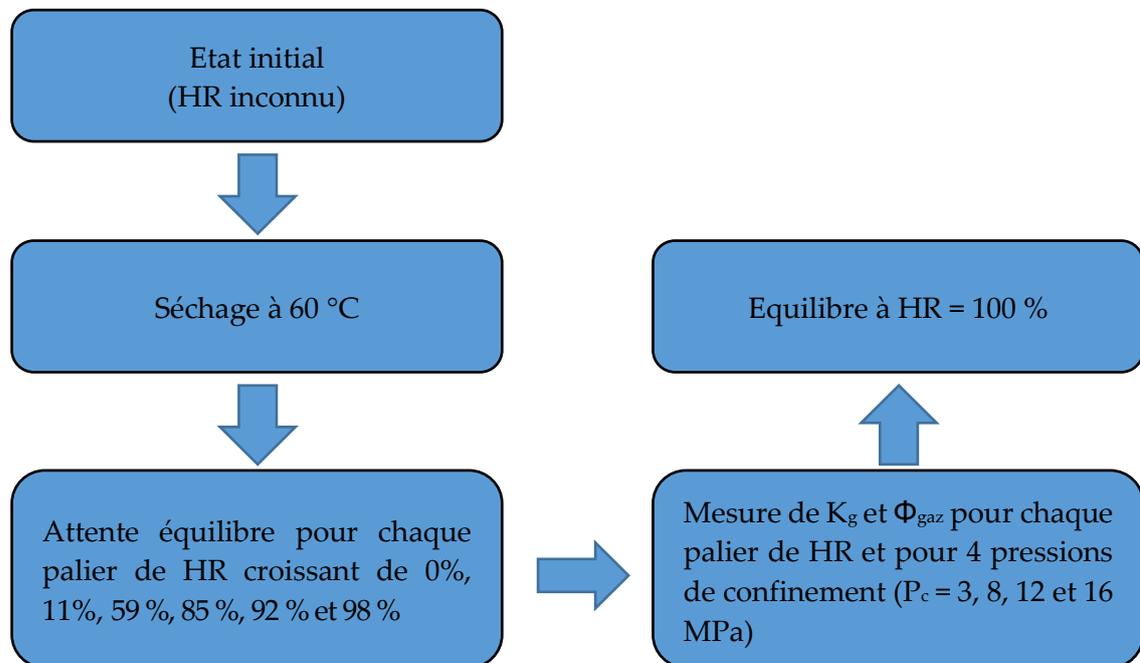


Figure 4.3 - Protocole expérimental de la phase d'imbibition des échantillons de la cellule T1 EST56033 utilisés dans ces essais

4.3.2 Méthode pour déterminer la porosité à l'eau et la saturation des échantillons

La masse initiale de chaque échantillon m_{ini} a été la première quantité mesurée car cela permet, au terme des cycles d'imbibition et/ou de séchage, le calcul de sa saturations initiale. Pour piloter l'humidité relative on a placé les échantillons dans des cloches contenant différentes solutions salines. La masse de chaque échantillon a été mesurée régulièrement jusqu'à sa stabilisation ($\Delta m/\Delta t \leq 0.01$ g/j). Nous avons alors considéré que l'échantillon avait atteint une valeur d'équilibre en masse m_{HR} pour une HR donnée. Dans le cas de l'état sec (HR = 0 %), $m_{HR} = m_{sec}$, de même pour l'état saturé (HR = 100 %), $m_{HR} = m_{sat}$. Par conséquent, on peut calculer la porosité de l'échantillon par adsorption d'eau :

$$\phi_{eau} = \frac{m_{sat} - m_{sec}}{\rho_{eau} * V_{sec}} \quad (4.1)$$

où ρ_{eau} est la densité de l'eau, V_{sec} est le volume de l'échantillon à l'état sec.

La saturation initiale (ou la saturation après équilibre) de l'échantillon, S_r , est exprimée par :

$$S_r = \frac{m_{ini}(m_{HR}) - m_{sec}}{m_{sat} - m_{sec}} \times 100 \% \quad (4.2)$$

3.3 Méthode de mesure du volume de pore accessible au gaz

Cette méthode de mesure a été mise au point dans notre laboratoire il y a 6 ans. C'est un outil efficace d'évaluation de l'évolution de la porosité d'un matériau sous une pression de confinement proche de situations réelles telles que les réservoirs de grès « *tight* », le stockage en grande profondeur de déchets nucléaires, etc. Les méthodes MIP¹⁹ ou SBET¹⁶ ne sont pas adaptées à ces situations car elles imposent d'utiliser le matériau réduit en petits blocs ou en poudre. La porosité obtenue est celle de l'état sec. La méthode, que nous proposons, donne le volume poreux du matériau partiellement saturé et mis sous contrainte. En théorie cela devrait déboucher sur une mesure plus précise de la porosité globale qu'avec une technique de saturation à l'eau. Cette dernière nécessite de (re) saturer totalement le matériau et provoque un gonflement dont il est difficile de repérer la fin. Yang et al¹¹¹ ont utilisé la méthode au gaz pour mesurer la porosité résiduelle accessible (par le gaz) à différentes saturations. Ils ont mesuré la porosité d'échantillons équilibrés à certains niveaux de HR en combinant les pores occupés par l'eau et ceux occupés par le gaz. Seul le volume de pore, accessible au gaz à différents niveaux de HR, a été mesuré dans cette étude afin de chercher une relation entre le volume de pore accessible au gaz et la perméabilité au gaz.

La mesure du volume de pore est effectuée par un appareil conçu et réalisé dans notre laboratoire (cf. figure 4.4). L'appareil se compose principalement d'une cellule hydrostatique, d'un système de confinement et d'un système d'injection de gaz (fourni par un réservoir tampon). L'hélium a été utilisé comme gaz d'injection pour tous les essais pour ne pas parasiter

les mesures par des effets de l'adsorption. La pression du gaz est très sensible à la température, celle de la salle d'essai était réglée à environ 20 °C par climatisation.

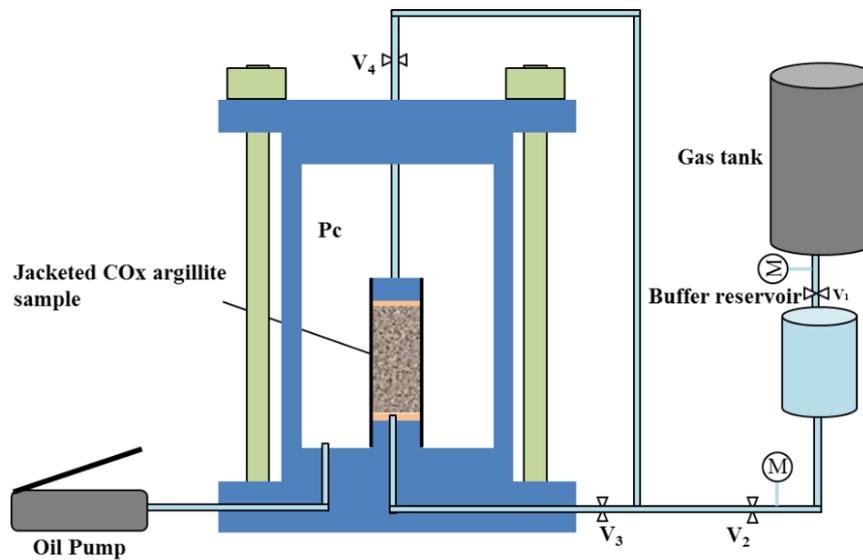


Figure 4.4 - Schéma de principe du dispositif d'essai de mesure du volume de pore

Méthodologie de mesure

Un travail fin d'étalonnage est important. Il faut d'abord mesurer les volumes morts V_{morts} du dispositif (tubes entre le tampon et la cellule, flasque de drainage...), pour cela on monte un échantillon d'acier inoxydable de 20 mm de diamètre et 40 mm de hauteur. On procède à une série de mesures avec cet échantillon en employant un volume tampon (connu) V_{tamp} .

Les mesures de pression sont effectuées avec des manomètres de marque Keller et mémorisées par le logiciel constructeur Control Center Series 30.

La vanne V_2 est fermée, la vanne V_1 est ouverte, afin d'obtenir de la bouteille de gaz comprimé une pression stabilisée P_{ini} dans le réservoir tampon.

Les vannes V_3 et V_4 sont ouvertes afin d'équilibrer à la pression atmosphérique P_0 les volumes morts du dispositif.

La vanne V_1 est fermée, les vannes V_2 , V_3 et V_4 sont ouvertes, la pression P_{ini} est appliquée aux volumes morts jusqu'à sa stabilisation à une valeur P_1 (Durée moyenne : 30 minutes). La loi des gaz parfaits nous permet alors de calculer V_{morts} .

Cette mesure effectuée, on remplace l'échantillon en acier inoxydable par l'échantillon réel dont on veut calculer le volume de pore accessible à l'hélium.

A nouveau on attend l'équilibre de pression (cela dépend de la teneur en eau de l'échantillon) et on relève la valeur P_2 .

En appliquant la loi des gaz parfaits à température constante nous obtenons :

$$P_1 * V_{Tamp} = P_2 * (V_{Tamp} + V_{morts} + V_{pore}) \quad (4.3)$$

Ainsi, on peut déduire le volume de pore accessible à l'hélium de l'échantillon testé :

$$V_p = \frac{P_1 - P_2}{P_2} * (V_{Tamp}) - V_{morts} \quad (4.4)$$

4.3.4 Méthode de mesure de la perméabilité au gaz

4.3.4.1 Mesure de la perméabilité au gaz

La méthode d'écoulement quasi-stationnaire, technique bien maîtrisée dans notre laboratoire, a été utilisée pour mesurer la perméabilité dans cette étude ; plus de détails sont disponibles (cf. ^{38, 89}). Cette méthode utilise le même dispositif que celui utilisé pour les essais de mesure du volume de pore (cf. figure 4.5). Mais par rapport à celui-ci, (injection simultanée de gaz sur les faces haute et basse de l'échantillon), on n'injecte le gaz que sur une seule face de l'échantillon. Pour exploiter la loi de Darcy, il faut connaître le débit volumique de gaz Q qui traverse l'échantillon. La perméabilité de l'argilite étant très variable (10^{-16} m^2 à 10^{-21} m^2)²⁴, diverses méthodes de mesure de Q sont employées. Pour les échantillons à HR < 85 %, la perméabilité étant souvent supérieure à 10^{-19} m^2 , un débitmètre (cf. figure 4.5 (A)) est monté en aval de l'échantillon pour mesurer directement Q . Pour les échantillons à HR \geq 85 %, la perméabilité est souvent inférieure à 10^{-19} m^2 , un capteur de pression (cf. figure 4.5 (B)) est utilisé pour mesurer l'augmentation de pression en aval de l'échantillon qui permet le calcul de Q .

La perméabilité au gaz s'obtient par l'expression bien connue^{89, 112}:

$$K_g = \frac{\mu Q}{A} * \frac{2 h P_{moy}}{(P_{moy}^2 - P_0^2)} \quad (4.5)$$

Où A est la surface de l'échantillon (m^2), μ est la viscosité dynamique du gaz (pour l'hélium, $\mu = 1,95 \times 10^{-5} \text{ Pa s}$ à température ambiante), h est la hauteur de l'échantillon (m), K_g s'exprime en m^2 . P_{moy} est la pression moyenne d'injection pendant un temps de mesure Δt .

4.3.4.2 Perméabilité effective et perméabilité relative

Lorsqu'un gaz est injecté dans un matériau partiellement saturé en eau, le gaz peut seulement circuler à travers les pores connectés remplis d'air ; la perméabilité au gaz ainsi mesurée est la perméabilité effective $K_{eff}(S_w)$. Quand le matériau est à l'état sec, il n'y a pas d'eau libre dans les pores et le gaz peut passer au travers de tous les pores connectés ; la perméabilité mesurée dans cette situation est la perméabilité sèche K_{sec} . Afin d'éliminer les effets des différences de saturation et d'évaluer son effet sur la perméabilité, on utilise la perméabilité relative au gaz, notée $K_{rg}(S_w)$ donnée par :

$$K_{rg}(S_w) = \frac{K_{eff}(S_w)}{K(sec)} \quad (4.6)$$

Normalement, $K_{rg}(S_w)$ varie entre 0 et 1 si le processus de saturation/désaturation ne crée pas de fissures significatives dans le matériau.

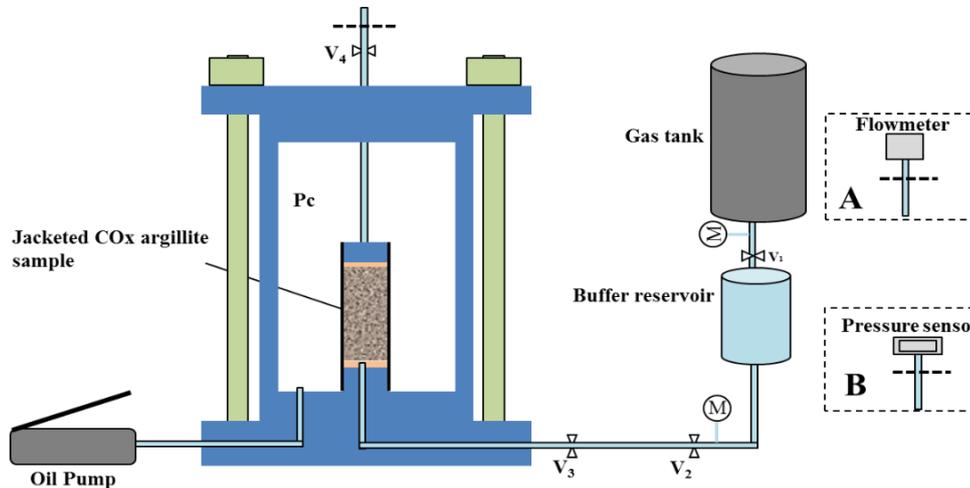
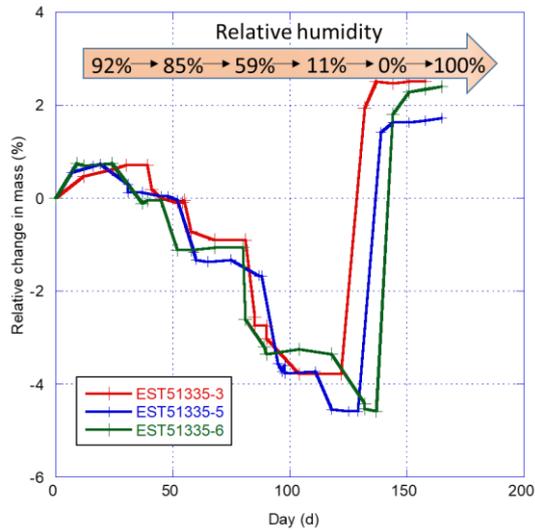


Figure 4.5 - Schéma du dispositif des essais de perméabilité. (A) avec débitmètre, (B) avec capteur de pression)

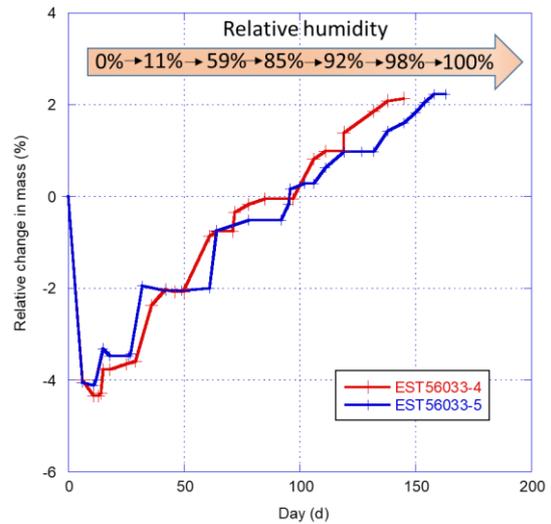
4.4 Résultats

4.4.1 Propriétés de rétention d'eau

La figure 4.6 présente les variations de masse des échantillons EST51335 et EST56033 mesurées lors de phases de séchage/imbibition. Il faut un peu moins de 15 jours pour chaque palier de HR pour obtenir l'équilibre en masse des échantillons. En revanche, la cinétique d'imbibition est beaucoup plus lente à haute HR et le devient encore plus pour HR = 100 %. Contrairement à Sofia M'Jahad²⁴ et Yang Song²⁹, nous n'avons pas observé de macro-fissuration lors de la phase finale de saturation à HR = 100 % d'une durée totale supérieure à 150 jours. Cela est peut-être dû au fait que les échantillons, gonflés en raison de l'adsorption d'eau, contiennent peu d'oxydes tels que la pyrite, source de fissures.



(a) EST51335 – Phases de séchage



(b) EST56033 – Phases d'imbibition

Figure 4.6 -Variation relative de masse des échantillons en phase de séchage/imbibition

La Figure 4.7 est similaire à une courbe de sorption-désorption. On ne peut réellement l'appeler comme telle car elle regroupe des échantillons de provenances différentes. Elle donne cependant d'intéressantes indications que l'on retrouve sur des courbes « réelles ». En effet, même si cela concerne des échantillons issus de différentes cellules T1, on peut remarquer un phénomène classique : la saturation mesurée lors de la phase de séchage (désorption) est supérieure à celle en phase d'imbibition (sorption). Ce résultat est aussi observé sur les matériaux cimentaires mais il semble s'atténuer avec le temps i.e. l'échantillon en imbibition « rattrape » très lentement son retard. En comparant les courbes de saturation des échantillons EST51335, on observe des différences marquées de saturation à haute HR mais elles sont très petites à faible HR. Par exemple, $S_w(\text{EST51335-5}) > S_w(\text{EST51335-6}) > S_w(\text{EST51335-3})$ pour HR = 85 % ou 92 %. Comme expliqué par Sofia M'Jahad²⁴, les différences à haute HR trouvent une origine dans la saturation initiale; la capacité de rétention d'eau de l'argilite diminue lorsque que celle-ci est faible. On observe en revanche que les courbes de saturation des échantillons EST56033 sont presque identiques, leurs saturations initiales sont très proches.

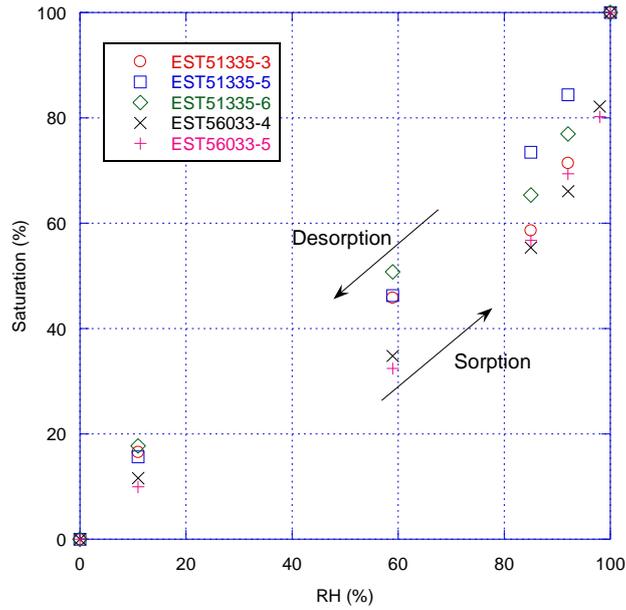


Figure 4.7 - Isotherme de sorption-désorption des échantillons

4.4.2 Evolution du volume de pores en phase de séchage / imbibition

Pour faciliter la lecture de la suite de ce travail nous proposons ici quelques définitions utiles pour l'analyse des résultats.

V_{pg} est le volume de pores accessibles au gaz pour une saturation donnée.

ϕ_{ng} est la porosité accessible au gaz, elle sera calculée par le rapport V_{pg}/V_{ech} .

ϕ_g est la porosité mesurée au gaz, c'est la valeur de ϕ_{ng} quand le matériau est sec. Comme il faut confiner le matériau pour mesurer sa porosité au gaz, ϕ_g sera définie à 3MPa de pression de confinement.

On indiquera parfois ces quantités quand elles seront mesurées sous des conditions particulières comme $\phi_{ng}(HR, P_c)$, indiquant simplement que le volume poreux a été mesuré au gaz pour un échantillon équilibré à HR% et soumis au confinement P_c . On pourra trouver la même logique de notation pour d'autres quantités.

ϕ_{rag} est une quantité relative définie par le ratio $\phi_{ng}(HR, P_c)/\phi_{ng}(sec, P_c=3MPa) = \phi_{ng}(HR, P_c)/\phi_g$. On voit bien l'intérêt de cette quantité. Elle permet de donner la proportion de pores occupés par le gaz sous un confinement donné et pour une humidité d'équilibre donnée. C'est en quelque sorte la saturation au gaz qui est ici calculée. En conséquence la saturation en eau, mesurée avec une technique gaz sera $S_{wg}=1-\phi_{rag}$. On pourra aussi préciser les conditions en notant $\phi_{rag}(HR, P_c)$.

4.4.2.1 Echantillons en phase de séchage

La figure 4.8 reprend les 3 échantillons en phase de séchage pour lesquels on a mesuré le volume de pores accessibles selon les différents niveaux d'humidité d'équilibre. Ces résultats

seront commentés plus en détail un peu plus loin mais on peut en extraire des tendances classiques et/ou logiques. On peut souligner dans un premier temps la bonne homogénéité des résultats qui indique que les différences de saturation initiale n'ont pas impacté significativement la porosité du matériau. On peut également souligner l'influence du confinement et de l'humidité relative dont l'augmentation de l'un ou l'une induit une diminution du volume poreux accessible.

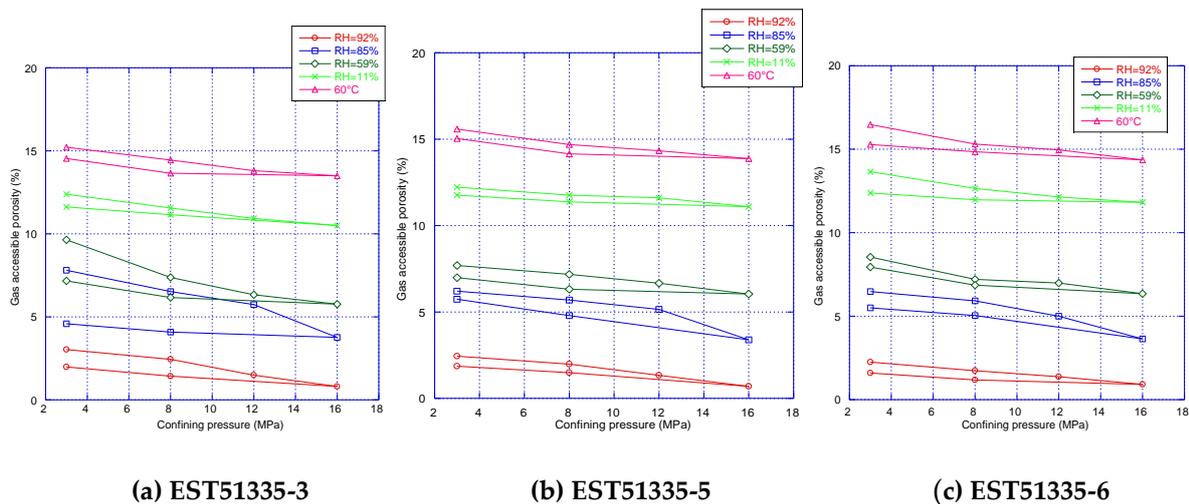
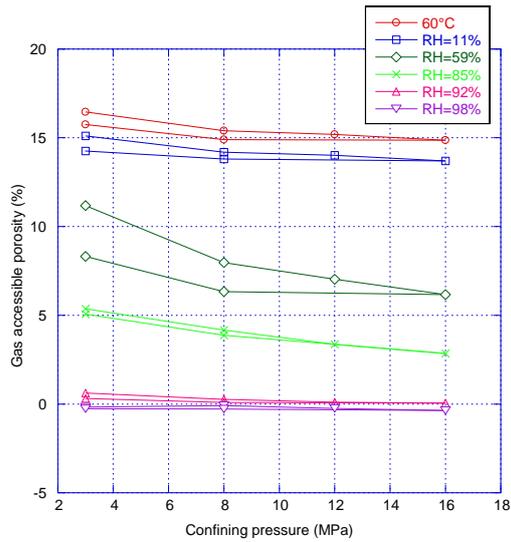


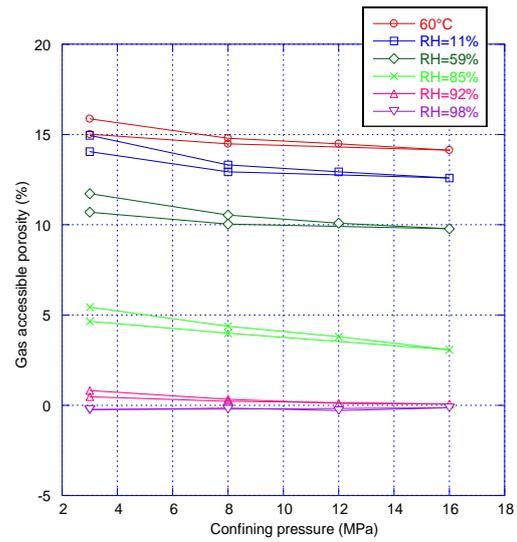
Figure 4.8 - Variation de ϕ_{ng} lors d'un cycle de confinement – influence de l'humidité (phase de séchage)

4.4.2.2 Phase d'imbibition

Les résultats pour les deux échantillons en phase d'imbibition sont donnés dans la figure 4.9. On y trouve bien évidemment les mêmes tendances que celles décrites précédemment. On peut simplement noter, à 98% d'humidité d'équilibre, que les mesures de volume accessible au gaz donnent un résultat parfois négatif. Il n'y a aucune signification physique à ce résultat qui ne fait qu'indiquer qu'étant très saturé le matériau n'offre plus d'espace poreux disponible pour le gaz. De là la valeur (faiblement) négative peut contenir des imprécisions quant à l'étalonnage de l'ensemble des réservoirs (malgré le soin pris pour le faire) et on se heurte ici à la limite de la mesure quand V_{pore} est très petit. On ne représentera pas ces valeurs par la suite.



(a) EST56033-4



(b) EST56033-5

Figure 4.9 - Variation de ϕ_{ng} lors d'un cycle de confinement – Influence de l'humidité (Phase d'imbibition)

4.4.2.3 Discussion

Pour analyser plus finement ces résultats on peut dans un premier temps les utiliser pour comparer la porosité « classique » obtenue par pesée entre l'état sec et saturé et celle déduite des résultats précédents pour les échantillons secs à 3MPa de confinement. La figure 4.10 ci-dessous permet cette comparaison.

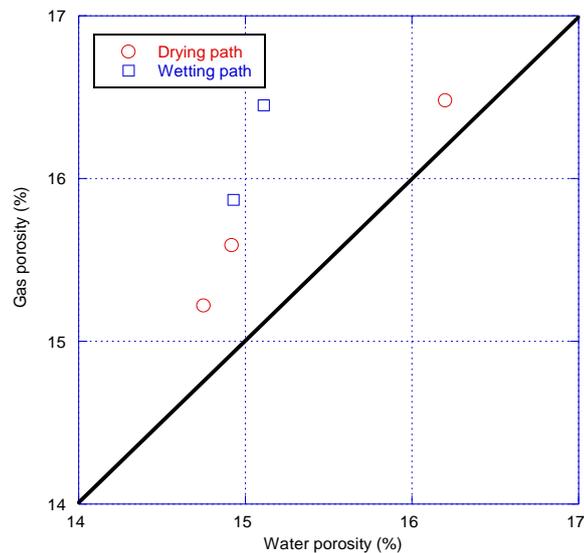


Figure 4.10 - Comparaison des porosités mesurées au gaz ou par pesée

L'examen de 4.10 montre que l'on a une bonne corrélation pour les échantillons en phase de séchage (ronds rouges) et moins bonne pour les échantillons en imbibition. Dans l'ensemble

la porosité au gaz est un peu plus élevée que par pesée. Ce résultat n'est pas étonnant car on peut penser que le gonflement observé lors de la saturation en eau a une influence sur l'espace poreux, que les molécules d'hélium peuvent atteindre des zones que l'eau ne peut remplir mais que, surtout, la saturation sous 100% d'humidité n'est pas parfaite. On sait que dans ce cas il reste du gaz piégé dans la phase liquide et que la saturation à 100% d'HR est très difficile à obtenir.

Il est ensuite intéressant de comparer les saturations obtenues par pesée S_w et celles obtenues au gaz $1-\phi_{ag}$. Ceci est présenté dans la figure 4.11. Les points cerclés de rouge sont pour le matériau en imbibition. La corrélation entre les deux méthodes doit ici être soulignée car elle est obtenue malgré quelques écarts sur les porosités. Cela met bien en évidence la qualité des mesures au gaz et la confiance que l'on peut avoir en elles. Le seul écart significatif est de nouveau obtenu pour les échantillons en imbibition aux hauts niveaux de saturation. Il s'explique assez logiquement par du gaz piégé dans le matériau qui mécaniquement va minorer ϕ_{ag} donc augmenter la saturation au gaz S_{wg} . Lors du séchage on a d'abord procédé à une saturation sans partir de l'état sec mais de l'état initial après carottage avant de le saturer à 92% d'humidité, ceci doit induire une moindre quantité de zones de gaz piégé.

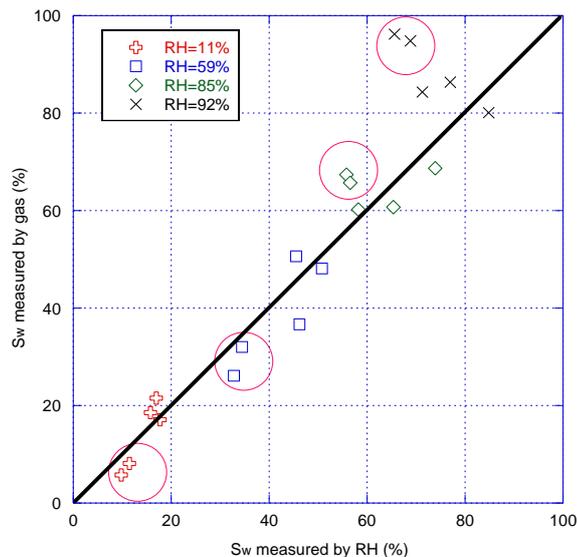


Figure 4.11 - Comparaison des saturations en eau mesurées par pesée et au gaz

Finalement l'examen de la variation de la saturation en gaz à différents niveaux de confinement et d'humidité amène un éclairage supplémentaire et un élément d'analyse complémentaire avec la perméabilité relative. Cette variation est respectivement décrite dans les figures 4.12 (échantillon en séchage) et 4.13 (échantillon en imbibition). Pour les deux familles d'échantillons, on a un effet couplé très net confinement/humidité. Pour les échantillons secs (ou très peu saturés HR=11%) le confinement n'a quasiment pas d'effet sur ϕ_{ag} . Au fur et à mesure de l'augmentation de saturation (ou d'humidité) la saturation au gaz devient de plus en plus sensible au confinement. On pourra noter au passage pour confirmer

les commentaires précédents sur la saturation que l'échantillon en imbibition, à haut niveau de saturation, n'a quasiment plus d'espace disponible pour le gaz. La différence de comportement peut avoir plusieurs origines : plus l'échantillon est humide et plus il est déformable ce qui réduit d'autant l'espace poreux accessible au gaz. A l'état très humide on peut aussi suspecter une redistribution de saturation d'eau due au confinement. En effet la compression d'un pore saturé entrainera une « expulsion » d'eau vers une zone non ou partiellement saturée. Cela ne peut avoir qu'un effet de diminution de porosité accessible au gaz et ce d'autant plus qu'elle est initialement faible (i.e. au confinement de 3MPa). On verra plus loin que ces explications sont bien en accord avec la variation de perméabilité relative.

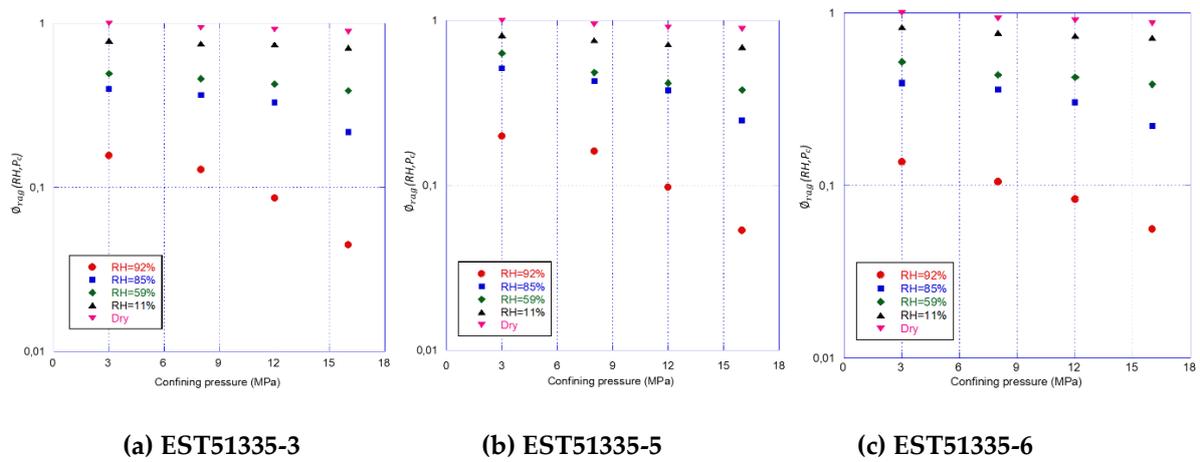


Figure 4.12 - Variation de la saturation en gaz avec le confinement et l'humidité d'équilibre (chemin de séchage)

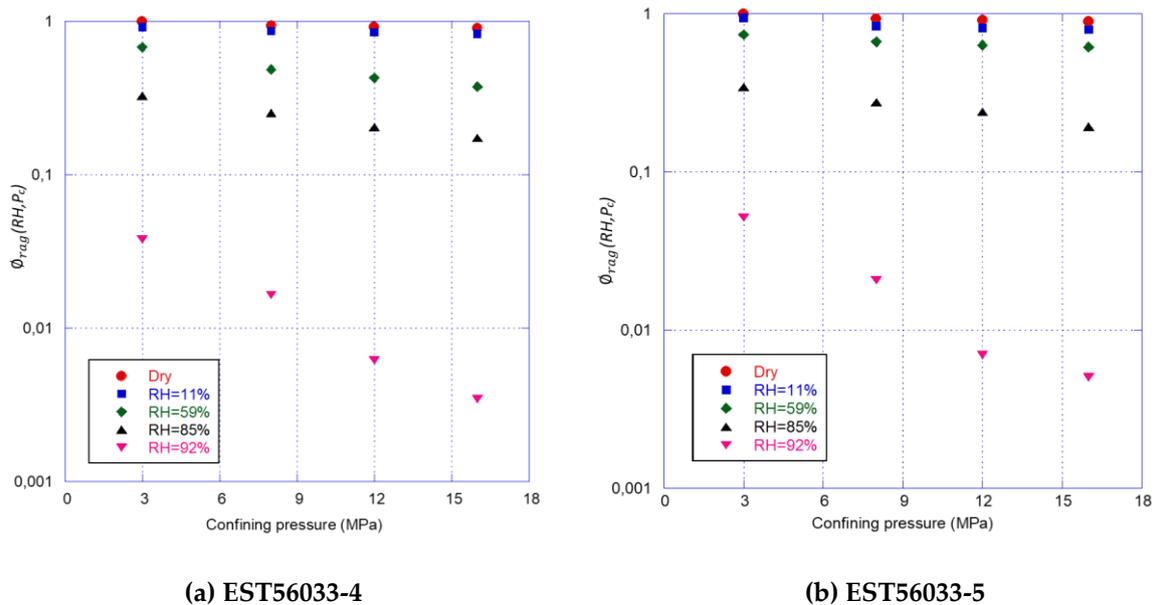


Figure 4.13 - Variation de la saturation en gaz avec le confinement et l'humidité d'équilibre (chemin d'imbibition)

4.4.3 Variation de la perméabilité sous confinement lors phases de séchage/ et d'imbibition

Dans la même logique que pour la porosité nous proposons de définir la perméabilité relative $K_{rg}(S_w, P_c)$ par le rapport $K_{eff}(S_w, P_c)/K_g(sec, P_c=3MPa)$ au lieu de $K_{eff}(S_w, P_c)/K_g(sec, P_c)$. L'information contenue est exactement la même dans les deux cas mais avec notre définition l'élément de comparaison est unique puisque c'est la perméabilité à 3MPa. Dans le deuxième cas il faut utiliser toute la courbe de variation $K_g(sec, P_c)$ pour exploiter K_{rg} . On pourrait encore simplifier en utilisant la perméabilité sèche moyenne de tous les échantillons pour calculer K_{rg} . Rappelons d'ailleurs que pour les calculs de simulation c'est K_{eff} qui est pertinent.

4.4.3.1 Echantillons en phase de séchage et d'imbibition

Comme précédemment nous présentons rapidement les tendances générales sur la perméabilité effective puis une petite discussion suit en croisant les résultats avec ceux obtenus sur la porosité.

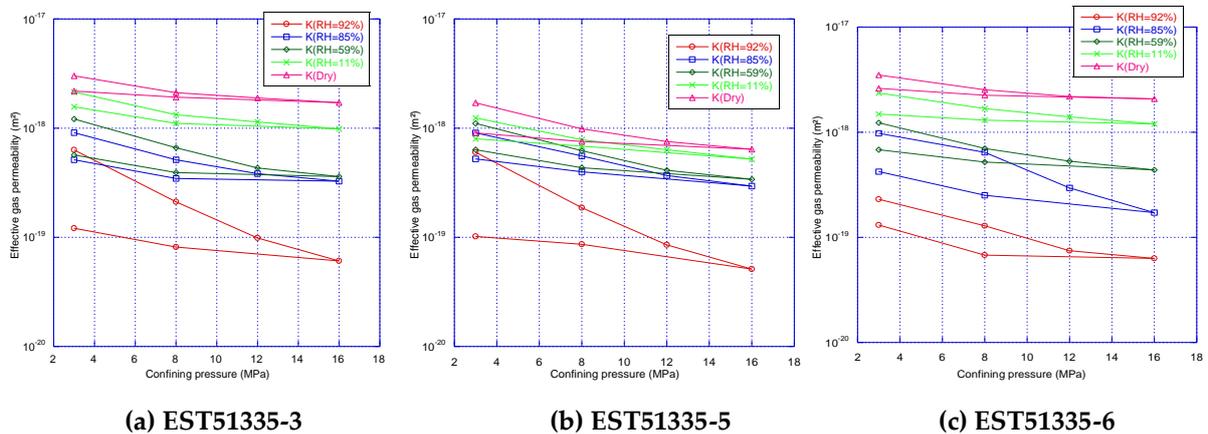
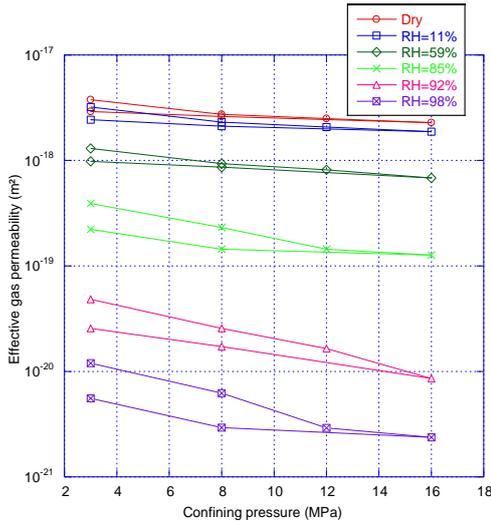
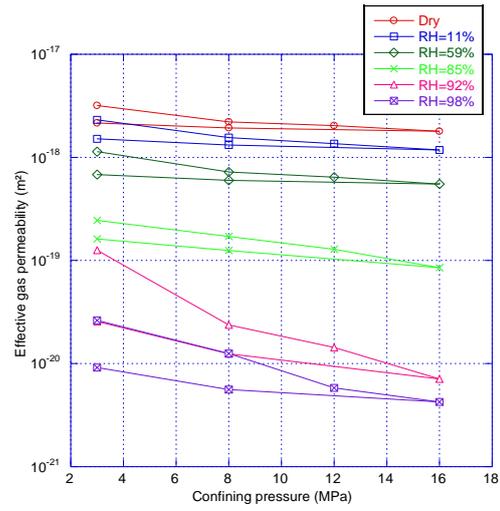


Figure 4.14 – Variation de la perméabilité effective sous confinement (phase de séchage)

Les figures 4.14 et 4.15 donnent les variations de perméabilité effectives pour les deux familles d'échantillons. Avant d'entrer dans le détail on peut remarquer que ces variations sont logiques et rentrent dans le cadre usuel de ce qui a déjà été observé sur ce matériau. On a une bonne homogénéité initiale pour tous les échantillons avec des perméabilités sèches qui sont toutes comparables.



(a) EST56033-4

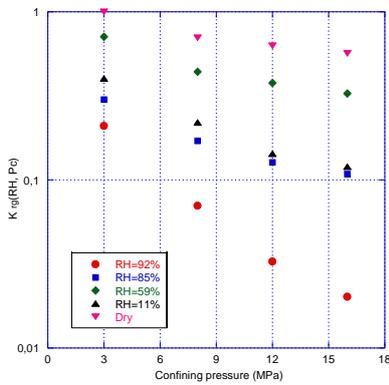


(b) EST56033-5

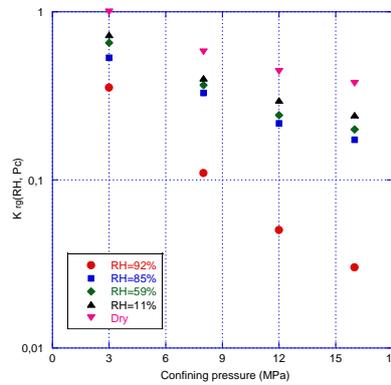
Figure 4.15 – Variation de perméabilité effective sous différents confinements (phase d'imbibition)

4.4.3.2 Discussion

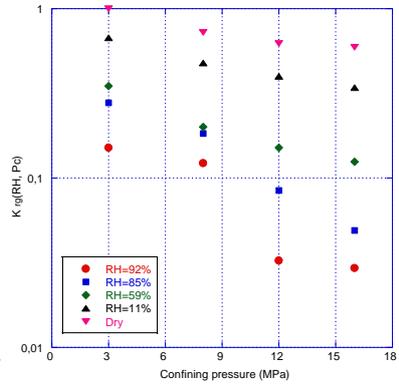
Comme pour la porosité nous allons reprendre les valeurs effectives pour les transformer en valeurs relatives (telles que définies auparavant). On obtient alors les figures 4.16 et 4.17.



(a) EST51335-3



(b) EST51335-5



(c) EST51335-6

Figure 4.16 - Perméabilités relatives sous confinement pour les échantillons en phase de séchage

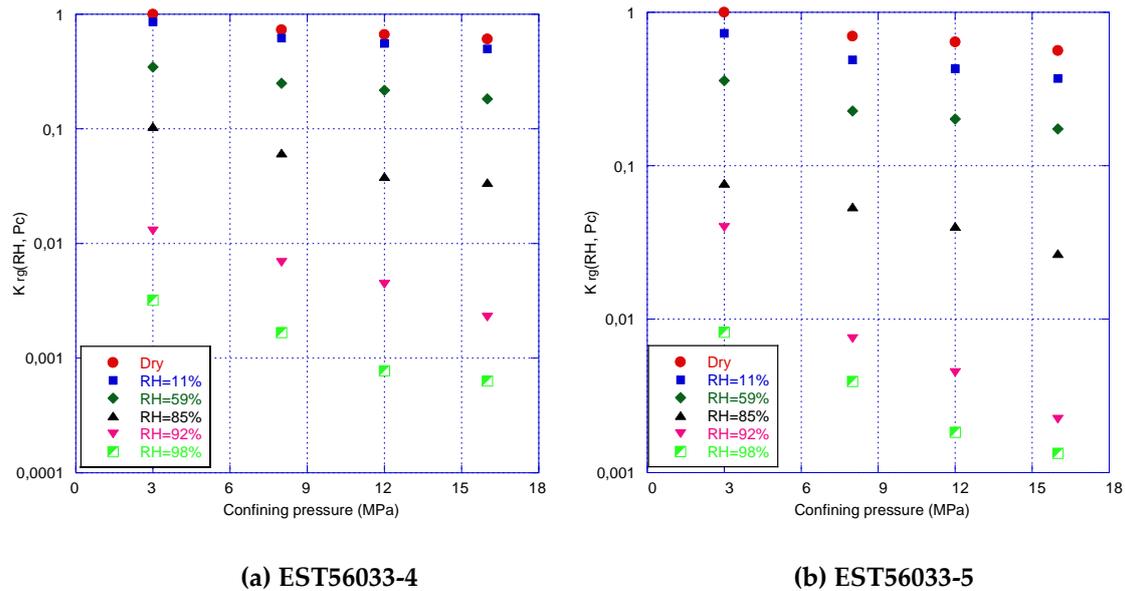


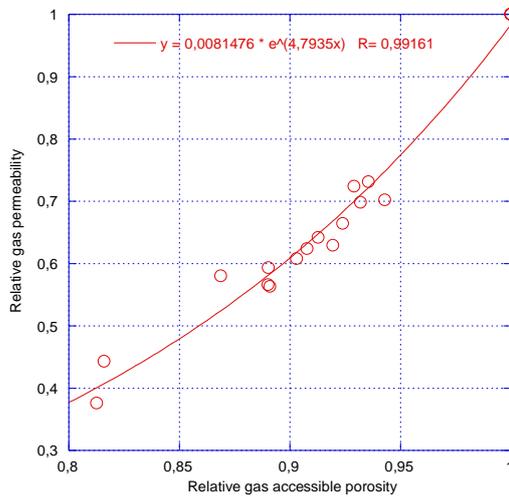
Figure 4.17 - Perméabilités relatives sous confinement pour les échantillons en phase d'imbibition

La première observation vient du matériau à l'état sec ou quasi sec. Rappelons que pour ceux-ci on avait une variation quasi inexistante de la saturation au gaz avec le confinement. C'est loin d'être le cas pour la perméabilité relative. Cela donne un éclairage nouveau car on peut maintenant se convaincre que c'est bien de la fermeture de fissure qui se produit lors du confinement dont l'effet est (sans doute) double. La réduction de la taille des pores au sens poromécanique est trop faible pour changer notablement la perméabilité. En revanche la fermeture de fissures a un effet immédiat. De plus elle se produit sans changer significativement le volume poreux accessible, on peut donc imaginer si l'ensemble de la porosité demeure accessible au gaz alors certains pores sont devenus « cul de sac » (donc sans participation à l'écoulement) et que la tortuosité a augmenté. Avec l'augmentation de la saturation on garde certainement ce phénomène qui doit cependant se superposer avec la redistribution de saturation évoquée plus haut et l'écrasement de pores fins suite à l'assouplissement du matériau.

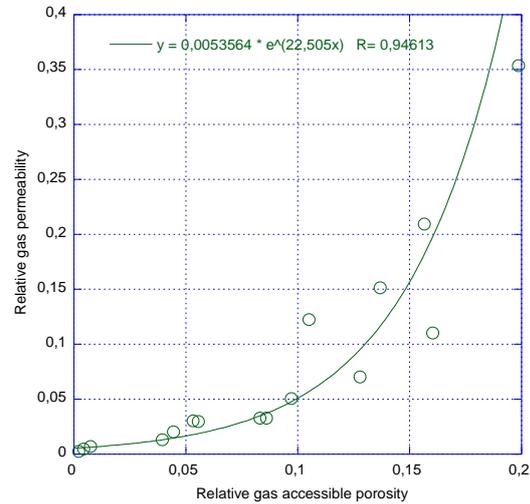
4.4.4 Relation entre la perméabilité relative au gaz et le volume relatif de pore

Il était tentant d'essayer de trouver une relation fine entre la perméabilité relative au gaz et la saturation au gaz (ϕ_{rag}) car par ses vertus « dynamiques » celle-ci est suivie au cours du confinement et donne une vision « en direct » de l'espace poreux disponible pour l'écoulement gazeux. Deux analyses distinctes ont été faites. On a d'abord choisi de représenter les effets du confinement sur l'ensemble des échantillons secs ou ceux saturés sous 92% d'HR. C'est la figure 4.18 qui en illustre les résultats. Au premier abord il semble que la corrélation est excellente. Il faut ensuite pondérer l'enthousiasme par le fait que pour chaque cas les domaines de variation de ϕ_{rag} sont contenus dans de très petits intervalles. La corrélation obtenue est donc très partielle. Pour compléter on a donc choisi d'élargir à toutes les humidités mais sous

les deux confinements extrêmes 3MPa et 16MPa. On voit immédiatement que les résultats sont beaucoup moins flatteurs. Si on prend une perméabilité relative de comprise entre 0.35 et 0.4 dans la figure 4.19 (a) on peut voir que cela donne une variation de ϕ_{rag} globalement comprise entre 0.2 et 0.8. C'est considérable et on ne peut plus dès lors conclure à un lien direct (et précis) entre ϕ_{rag} et K_{rg} , même si on observe une corrélation globale (et logique).

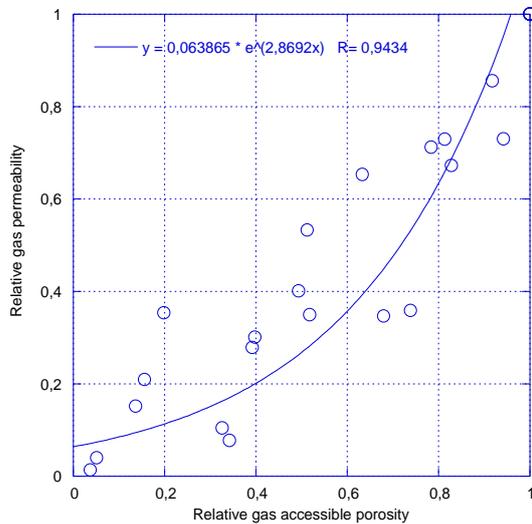


(a) HR = 0 %

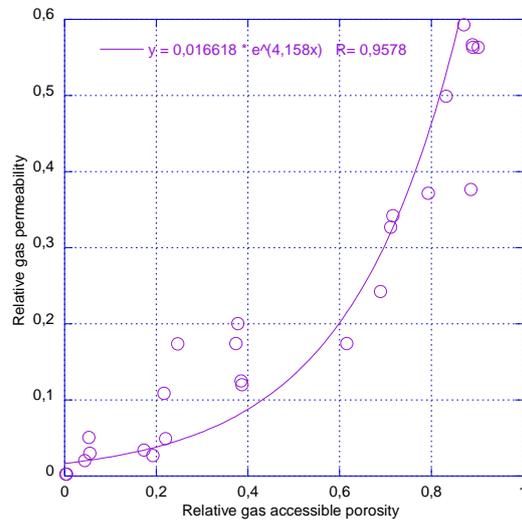


(b) HR = 92 %

Figure 4.18 - K_{rg} vs ϕ_{rag} mesurées à différents confinements et différentes humidités relatives



(a) $P_c = 3$ MPa



(b) $P_c = 16$ MPa

Figure 4.19 - K_{rg} vs ϕ_{rag} mesurées à différentes humidités relatives et différents confinements

4.6 Conclusion

L'objectif de cette partie du travail était de « revisiter » les techniques de mesure de la porosité, de la saturation en eau par des techniques dites « gaz ». L'intérêt de celles-ci est

qu'elles permettent d'avoir une vision dynamique de l'espace poreux disponible pour le gaz, pour différents états de saturation, selon la pression de confinement appliquée au matériau. On peut donc en parallèle examiner la variation de cet espace poreux qui représenté en valeur relative donne la quantité ϕ_{rag} qui n'est autre que la saturation au gaz. Il a été possible dans un premier temps de comparer la porosité « gaz » avec celle issue classiquement d'une technique de pesée. La corrélation entre les deux mesures est satisfaisante. Nous pensons que les écarts (porosité au gaz plus élevée) viennent d'une saturation en eau incomplète des échantillons qu'il est très difficile d'atteindre à 100% d'humidité. La comparaison des saturations en eau S_w à celle déduite des mesures gaz S_{wg} montre une très bonne corrélation, ceci conforte la bonne qualité et l'efficacité de la mesure au gaz. Les points de discordance concernent les échantillons en imbibition aux hauts niveaux d'humidité. Ils s'expliquent aisément par l'existence de gaz piégé dans la phase liquide. L'examen en parallèle des variations de saturation en gaz (ϕ_{rag}) et de la perméabilité relative avec le confinement et l'humidité relative d'équilibre est instructif car il dégage deux extrêmes dans le comportement du matériau. Le cas sec (ou quasi sec) pour lequel le confinement ne fait pas varier (ou de manière négligeable) ϕ_{rag} tandis qu'en parallèle la perméabilité relative montre une forte sensibilité à celui-ci. L'explication peut être trouvée dans le fait que le confinement ferme des fissures de volume négligeable devant la porosité mais qu'il ne fait pas varier significativement le volume poreux. En revanche la fermeture de fissures a un impact bien connu sur la perméabilité. Dans le cas très saturé les deux quantités ϕ_{rag} et la perméabilité relative deviennent toutes deux de plus en plus sensibles au confinement. L'explication logique serait que l'on garde l'effet fermeture de fissures mais qu'à celui-ci s'ajoutent une plus grande déformabilité du matériau et une redistribution de la saturation. La plus grande déformabilité a été retrouvée lors des essais poromécaniques. La redistribution de la saturation vient de la compression d'un espace saturé qui devra expulser de l'eau vers d'autres zones vides ou partiellement saturées, engendrant mécaniquement une réduction de la taille du chemin de passage du gaz.

Même si on a trouvé une corrélation globale (somme toute assez logique) entre la variation de ϕ_{rag} et celle de la perméabilité relative. Il n'y a en revanche aucune relation précise entre ces deux quantités. Cet aspect ne doit pas surprendre car on ne peut attendre d'une propriété globale (la porosité) qu'elle soit capable de traduire la complexité d'un espace poreux qui pilote l'écoulement.

Chapitre 5 Mesures de la perméabilité à l'eau et du coefficient de Biot de l'argilite

5.1 Introduction

L'étude expérimentale du coefficient de Biot de l'argilite dans l'état partiellement saturé ou sec a été menée par injection du gaz pour contrôler la pression de pore. Nous avons montré avec cette technique l'existence de phénomènes d'adsorption pour le matériau sec et un coefficient de Biot très proche de 1 quand il est mesuré avec un gaz non adsorbable (hélium) et quelle que soit son état de saturation. Il reste cependant nécessaire de comparer ces résultats par des mesures menées avec de l'eau et donc en conditions complètement saturées. C'est pourquoi nous couplons cette étude avec les tests de perméabilité à l'eau qui nécessitent aussi la pleine saturation en eau. Mis à part le fait que cette perméabilité est une donnée de base sur les propriétés de l'argilite, il y a aussi le besoin de comparer plus systématiquement les valeurs de laboratoire à celles mesurées in-situ, différant de celles-ci par un ordre de grandeur (inférieur) et de comprendre l'origine de cette différence. C'est un problème clef pour évaluer et prévoir la vitesse de dissipation des pressions de pores lors d'un chauffage de l'argilite résultant de l'activité thermique des déchets HAVL. La perméabilité à l'eau doit aussi être analysée pour évaluer les propriétés de transport de l'eau dans la roche hôte saine comme dans celle qui se situe dans la zone EDZ. Cette partie présente donc le travail que nous avons effectué pour mesurer la perméabilité à l'eau et le coefficient de Biot de l'argilite saturée par injection d'eau. Elle se divise en deux parties. La première étudie la perméabilité à l'eau pure et à l'eau de site sur des échantillons de différentes dimensions et différentes cellules T1. Nous avons également analysé les effets du confinement et de la pression d'eau sur la perméabilité. La seconde porte sur l'étude du coefficient de Biot de l'argilite saturée en faisant varier le confinement et la pression d'eau.

5.2 Préparation des échantillons

La perméabilité à l'eau de l'argilite est très faible et cela handicape considérablement toutes les études menées avec ce fluide pour plusieurs raisons : il est extrêmement difficile d'obtenir et de vérifier la saturation complète et les mouvements d'eau sont très lents, de là le contrôle d'une pression de pore homogène et maîtrisée est souvent plus un espoir qu'une réalité. L'injection d'eau s'accompagne de gonflement qui ralentit encore les échanges. A l'échelle du laboratoire le choix d'échantillons de faible dimension s'impose si on veut espérer faire quelques essais dans un temps acceptable. La dimension des échantillons utilisés pour l'essai perméabilité est de 20 mm de diamètre et de 10 mm de hauteur. En prenant en considération la taille des jauges, utiles pour l'essai simultané de perméabilité et poromécanique, la dimension des échantillons sélectionnés sera de 20mm de diamètre et de

Tableau 5.1 - Principales caractéristiques et conditions expérimentales des échantillons

Réf. de l'échantillon	Dimensions (mm)		Contenu initial de l'eau (%)	Conditions saturées		Eau utilisée	Temps saturé (Jour)	L'écoulement de l'eau? (Oui/Non)	Pompe d'alimentation en eau
	Diamètre	Hauteur		Confinement (MPa)	Pression de l'eau (MPa)				
EST51446-33	19.35	40.85	N/A	6	2	Eau pure	40	Yes	Gilison
EST51446-34	19.53	41.17	4.56	6	2	Eau pure	36	Yes	Gilison
EST49114-5	37.63	44.40	N/A	6	2	Eau de site	N/A	No	ISCO
EST49114-6	36.99	43.44	N/A	6	2	Eau de site	N/A	No	ISCO
EST53642-22	19.37	10.12	5.09	12	4	Eau pure	10	Yes	Gilison
EST53642-24	19.59	10.48	4.11	12	4	Eau de site	14	Yes	ISCO
EST56033-9	19.55	9.79	6.05	6	2	Eau de site	18	Yes	ISCO
EST56033-18	19.54	24.63	5.70	6	2	Eau de site	37	Yes	ISCO

40mm (ou 25mm) de hauteur. Le tableau 5.1 fournit plus de précision et d'informations sur les échantillons.

5.3 Méthodologie expérimentale

La méthode classique d'imbibition sous HR très élevée (100%) est très délicate à employer car on ne sait jamais vraiment quand le processus d'imbibition-gonflement doit être stoppé pour obtenir un échantillon à saturation totale et sans (trop) de fissures. En conséquence, pour pouvoir mesurer la perméabilité à l'eau du matériau, il est préférable d'assurer la saturation par injection en cellule. Le confinement de l'échantillon permet aussi de pondérer la création et l'extension de fissures (c'est notre hypothèse). Le dispositif d'essai est très simple et il est représenté figure 5.1. La pression de l'eau injectée est fournie par une pompe Gilson (cf. figure 5.2 (a)) pour les premiers échantillons testés, puis par une pompe seringue ISCO (cf. figure 5.2 (b)) pour les échantillons suivants. Ce second type de pompe permet d'offrir une pression de pore (d'injection) plus stable, avec l'enregistrement en continu du volume injecté de résolution meilleure que le nano-litre (avec LabView). L'eau est injectée à partir du bas de la cellule. On admet que la saturation est obtenue quand l'eau sort du drainage supérieur. Ceci marque le « top » à partir duquel nous pouvons démarrer l'essai de perméabilité à l'eau. Le logiciel LabView couplé avec le système d'injection en continu et de donner alors une estimation de la perméabilité et de son évolution au cours du test. Comme pour les essais de perméabilité au gaz, les essais de perméabilité à l'eau sont effectués dans une pièce dont la température est maintenue à 20°C environ. Ce point est crucial car dans ce type de mesure la (variation de) température, même faible, est particulièrement néfaste. Elle joue sur la dilatation des pièces métalliques, de l'eau et de l'échantillon mais dans une moindre mesure. Quelques fractions de degré vont entraîner des changements de confinement, de pression d'eau qui peuvent facilement fausser les résultats quand on les analyse sur des volumes nanométriques.

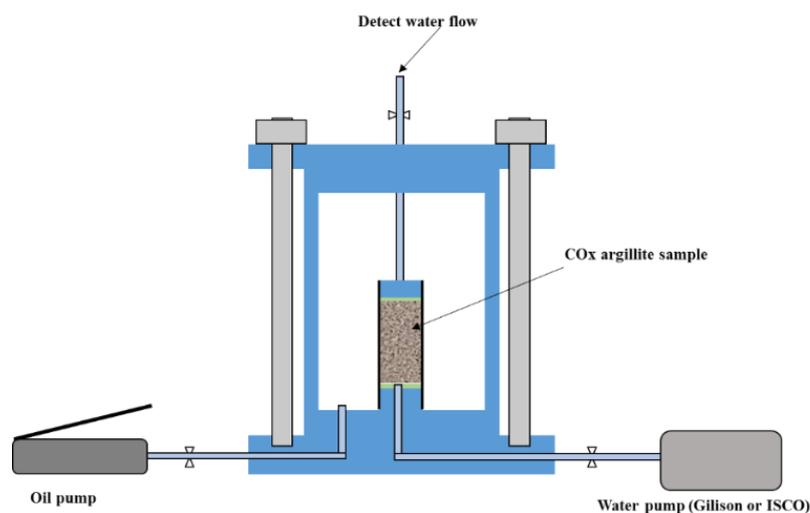
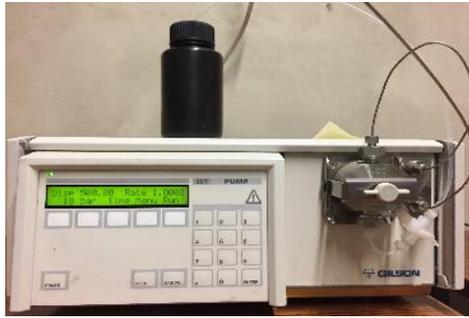


Figure 5.1 - Schéma du dispositif permettant de saturer l'échantillon et de mener l'essai de perméabilité à l'eau



(a) Pompe Gilson



(b) Pompe ISCO

Figure 5.2 - L'image des deux pompes utilisées pour l'essai

Les conditions de contraintes in-situ sont souvent estimées par: une contrainte totale verticale $\sigma_v = 12.7\text{MPa}$, une contrainte horizontale majeure $\sigma_H = 12.7\text{-}14\text{MPa}$, une contrainte horizontale mineure $\sigma_h = 12.4\text{MPa}$, et une pression de pore $u = 4.9\text{MPa}$ ¹¹³. Ces valeurs entraînent que la contrainte effective de Terzaghi est d'environ 8MPa dans le site. Afin de réduire l'influence d'une perturbation supplémentaire, nous avons choisi d'appliquer (en entrée d'échantillon) la même contrainte effective de Terzaghi et/ou sa moitié, c'est-à-dire $P_c = 6\text{MPa}$, $P_i = 2\text{MPa}$ et $P_c = 12\text{MPa}$, $P_i = 4\text{MPa}$, lors de la saturation de l'échantillon (cf. tableau 5.1). L'eau pure et l'eau de site sont utilisées dans les essais pour voir si cela entraîne des effets sur la durée de saturation et la mesure de perméabilité. Nous verrons, un peu plus loin dans les résultats et perspectives, qu'en réalité la contrainte effective de Terzaghi n'est pas homogène dans le matériau et nous proposerons des essais futurs visant à minimiser cet aspect.

Dans le cas homogène, la perméabilité à l'eau est calculée par la loi de Darcy comme suit:

$$K = -\frac{Q\mu_w}{A} \times \frac{1}{\text{Grad}(P)} \quad (5.1)$$

où Q est le débit d'eau, μ_w est la viscosité de l'eau, A est la coupe transversale de l'échantillon et $\text{Grad}(P)$ est le gradient de pression ($(P_i - P_o)/L$). L est la longueur de l'échantillon.

5.4 Résultats et discussion

5.4.1 Perméabilité à l'eau pendant et après la saturation

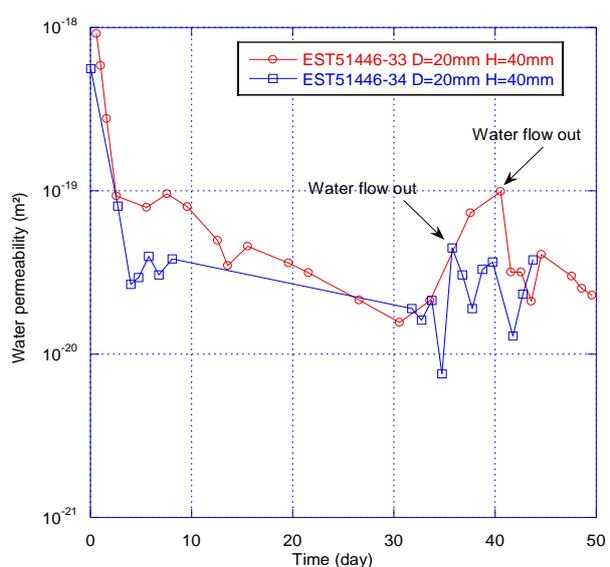
On peut enregistrer les volumes injectés dès la phase de saturation et traduire cette mesure en perméabilité à l'eau. Cela est indicatif mais a l'intérêt d'être rapide et d'indiquer la stabilité de l'écoulement. La figure 5.3 précise les évolutions de la perméabilité à l'eau pendant et après le processus de saturation. Nous observons d'abord que la perméabilité de tous les échantillons diminue lors de la saturation et a tendance à se stabiliser lorsque l'échantillon est

saturé. Au début de la saturation, la perméabilité à l'eau est environ 10^{-18}m^2 , ce processus est dû à une superposition de volumes injectés dus à la perméation et à l'imbibition. Elle diminue ensuite au fil des jours légèrement avec l'augmentation du degré de saturation. Le tableau 5.1 précise le temps nécessaire à ce processus et la présence ou non d'eau expulsée en haut de la cellule. Nous avons pu observer cet écoulement pour les échantillons de la cellule T1 EST51446, EST53642, EST56033.

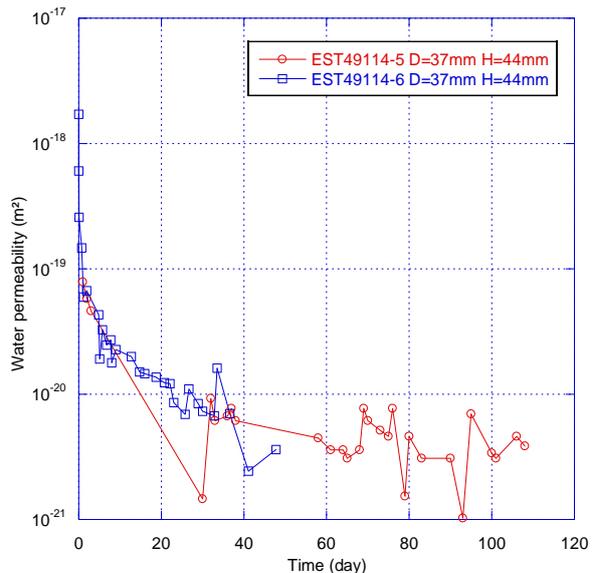
- Pour les échantillons EST51446-33 et EST51446-34, nous observons que l'eau sort respectivement au 40^{ème} jour et au 36^{ème} jour.
- Pour les échantillons EST53642-22 et EST53642-24, l'écoulement de l'eau se produit respectivement au 10^{ème} jour et au 14^{ème} jour.
- Pour les échantillons de la cellule T1 EST56033, nous observons, également, un écoulement d'eau au 18^{ème} jour et au 37^{ème} jour.

La figure 5.4 donne quelques photos de l'écoulement quand il est détecté. Cependant, la figure 5.3 (b) et tableau 5.1 indiquent que parfois nous n'observons pas de présence d'eau dans le tube haut pour ces deux échantillons qui sont de dimensions importantes et ceci même après une longue durée, 108j pour l'échantillon EST49114-5 et 48j pour l'échantillon EST49114-6. Cela signifie que ces deux échantillons ne sont pas encore entièrement saturés. Logiquement les échantillons de petite dimension peuvent être saturés en un temps relativement court, alors qu'il s'avère difficile de saturer un échantillon de grande dimension. Les résultats des échantillons EST56033-9 et EST56033-18 possédant une hauteur différente, ont également conduit à cette conclusion. Tous les résultats provenant de ces échantillons nous indiquent que l'argilite est un matériau d'une faible perméabilité à l'eau, et que le processus de saturation est très lent. C'est ce qui rend aussi délicat (voire problématique) la réalisation d'essais poromécaniques à l'eau de ce matériau. Ces propriétés confirment que les formations d'argilite possèdent une bonne capacité d'étanchéité pour le dépôt de déchets HA-MAVL.

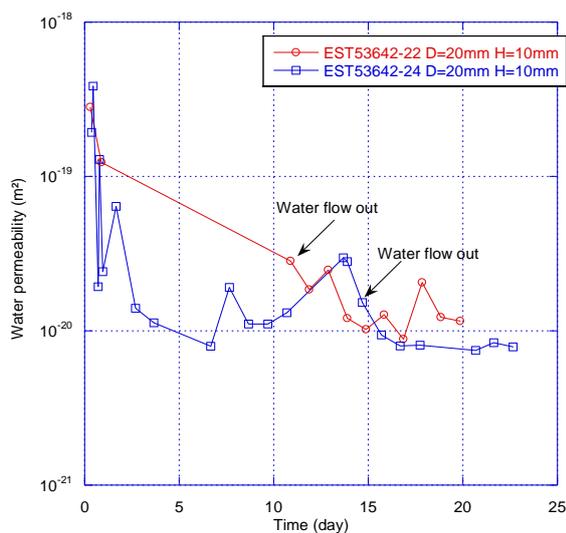
L'analyse de la figure 5.3 (a) et du tableau 5.1, nous montre que l'état initial de l'échantillon a des effets sur le temps de saturation et qu'un séchage initial permet de réduire la durée du processus de saturation. Les microfissures causées par le retrait du processus de déshydratation pourraient être une explication en rendant plus facile le transport d'eau à travers l'échantillon. Ceci est cependant contradictoire avec les essais de sealing menés par ailleurs au laboratoire. Nous pouvons également observer que le temps de saturation et la perméabilité à l'eau finale dépendent de l'état initial des échantillons qui a donc une incidence significative sur la perméabilité à l'eau. Enfin, en comparant la perméabilité à l'eau des échantillons de la cellule T1 EST53642 (cf. figure 5.3 et tableau 5.1), nous pouvons voir que l'influence de l'eau injectée n'a pas une incidence considérable. La perméabilité à l'eau mesurée par l'eau pure est d'environ 10^{-20} à 10^{-21}m^2 , alors qu'elle est d'environ 10^{-21}m^2 , mesurée par l'eau de site.



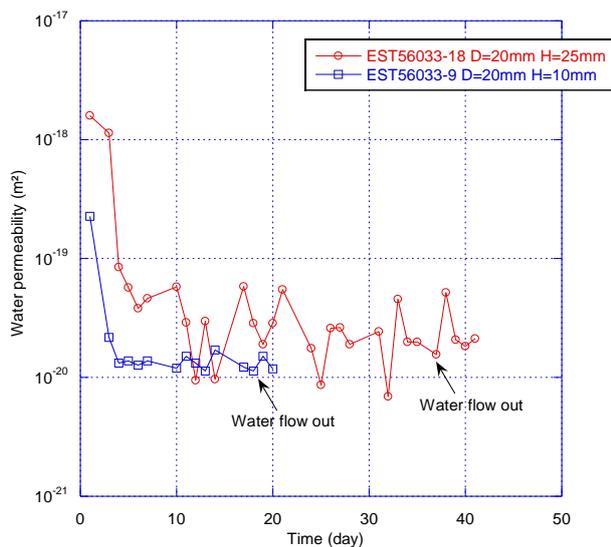
(a) Les échantillons de la cellule T1 EST51446



(b) Les échantillons de la cellule T1 EST49114



(c) Les échantillons de la cellule T1 EST53642



(d) Les échantillons de la cellule T1 EST56033

Figure 5.3 - Perméabilité à l'eau des échantillons de différentes cellules T1 mesurée pendant et après la saturation



(a) L'échantillon EST51446-33 (b) L'échantillon EST53642-24 (c) L'échantillon EST56033-9

Figure 5.4 - Détection de l'écoulement de l'eau du tube haut

5.4.2 Effets du confinement et de la pression d'injection sur la perméabilité à l'eau

De nombreux résultats obtenus en laboratoire ne semblent pas cohérents avec ceux évalués in-situ. Il semble alors utile de mener quelques investigations sur certains paramètres qui pourraient faire varier notablement la perméabilité à l'eau. Nous avons donc mené quelques investigations initiales sur l'effet du confinement et de la pression d'injection. Après la première phase de saturation et d'essais nous avons poursuivi les tests sur les échantillons EST53642-24 et EST56033-9.

La figure 5.5 donne la perméabilité à l'eau K_w des deux échantillons mesurés sous différents confinements P_c et diverses pressions d'eau injectée P_{iw} . Nous voyons que la perméabilité sous différents P_c et P_{iw} varie entre 10^{-20} - 10^{-21} m². Les résultats sont conformes à ceux obtenus par Bemmer et al⁶⁰, Sophia M'Jahad²⁴ et Yang Song²⁹. Pour les deux échantillons, nous notons que la perméabilité croît avec l'augmentation de P_{iw} sous le même confinement. Par exemple, pour l'échantillon EST53642-24 à $P_c=12$ MPa, K_w est augmenté de plus d'un ordre de grandeur pour un accroissement P_{iw} de 1MPa à 8MPa. Cette augmentation est très significative puis diminue graduellement pour sembler se stabiliser à haute pression d'injection. A ce stade on peut se poser des questions sur l'origine de cette augmentation : est-ce un effet de la diminution de la contrainte effective de confinement? Est-ce un effet de l'intensité de la pression d'injection moyenne ou un effet du gradient de pression ? Pour répondre à la première question il semble que l'effet de la contrainte effective de confinement joue un rôle car la perméabilité à l'eau diminue avec l'augmentation de P_c quand la pression d'injection est gardée constante. Par exemple, pour l'échantillon EST53642-24 à $P_{iw}=4$ MPa, K_w diminue de 1.05×10^{-20} m² à 6.9×10^{-21} m² quand P_c augmente de 8MPa à 20MPa. Il semble

cependant que l'influence de la pression d'injection soit plus grande et que la perméabilité à l'eau de l'argilite est plus sensible à la pression d'injection qu'à la pression de confinement. Cela semble ne pas être en accord avec ce que l'on observe usuellement, en particulier avec l'injection de gaz. Une analyse plus approfondie de ce phénomène est donnée dans la section suivante.

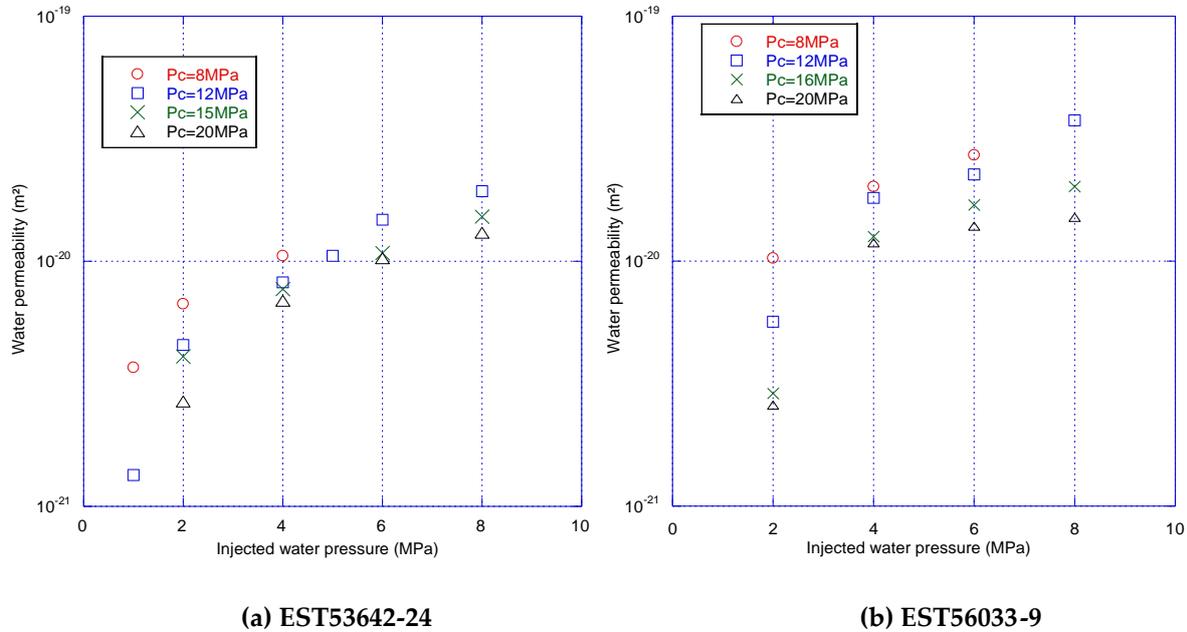


Figure 5.5 - Variation de la perméabilité à l'eau avec la pression de l'eau injectée sous différentes pressions de confinement

5.4.3 Variation de la perméabilité à l'eau à même niveau de contrainte effective de Terzaghi

La perméabilité à l'eau est donc conditionnée par le confinement et la pression de pore (et peut être le gradient de pression), elle est souvent écrite sous la forme d'une fonction $K=f(P_c - n_k P_p)$, en considérant que K suit une loi de contrainte « effective », où n_k est le coefficient de contrainte effectif¹¹⁴. Usuellement, pour un matériau constitué d'un composé unique, par exemple de l'argile ou du quartz, n_k varie de 0 à 1¹¹⁵. Ici, afin d'approfondir l'étude des effets de P_{iw} et P_c sur la perméabilité à l'eau, nous supposons en première approche que n_k vaut 1 et nous utilisons la contrainte effective de Terzaghi pour exprimer ces influences de couplage. La figure 5.6 montre la perméabilité à l'eau des deux échantillons mesurés sous différents P_c et P_{iw} mais tout en gardant la « même » contrainte effective de Terzaghi. C'est en fait une pseudo contrainte effective car elle varie dans l'échantillon de $(P_c - P_i)$ en entrée à P_c en sortie. Nous avons donc considéré que la contrainte était celle en entrée car cela ne contredit pas les conclusions tirées de ces essais (voire les renforce). Ces essais préliminaires confirment que l'influence de P_{iw} sur K_w est plus importante que l'influence de P_c sur K_w . Cela signifie que l'évolution de la perméabilité à l'eau ne suit pas la fonction $k=f(P_c - P_p)$, elle indiquerait que n_k dépasse l'unité pour l'argilite. Cette même constatation est valable pour :

- des grès riches en argiles par Wardy et al¹¹⁴, Javad et al¹¹⁶
- du calcaire par Ghabezloo et al¹¹⁵

Il faut néanmoins constater que ce coefficient n_k n'a selon nous rien à voir avec le coefficient de Biot au sens où celui-ci débouche sur une contrainte effective qui permet de calculer les déformations élastiques du milieu. Ici n_k est plus à prendre comme un « coefficient d'influence » de la pression de pore, auquel on pourrait sans doute ajouter si on veut garder le même esprit de modélisation, un coefficient d'influence de la contrainte moyenne (ou du confinement dans notre cas). Dans certains cas, l'utilisation du terme « coefficient de Biot » pour n_k est sans doute inapproprié. Il faut maintenant, et c'est une perspective intéressante, identifier si ce phénomène est un effet gradient de pression (qui mettrait en défaut l'application de la loi de Darcy) ou un effet de pression moyenne (voire une combinaison des deux). Pour vérifier le premier cas, il semblerait donc judicieux, même si cela impose des moyens expérimentaux plus conséquents, de mener des essais à pression de pores variable tout en maintenant le gradient de pression constant. Cela fait partie de nos objectifs. De là, on peut espérer établir un modèle permettant de décrire les effets de ces paramètres sur la perméabilité à l'eau de l'argilite et de construire une relation en contrainte effective, au sens de la perméabilité à l'eau de l'argilite.

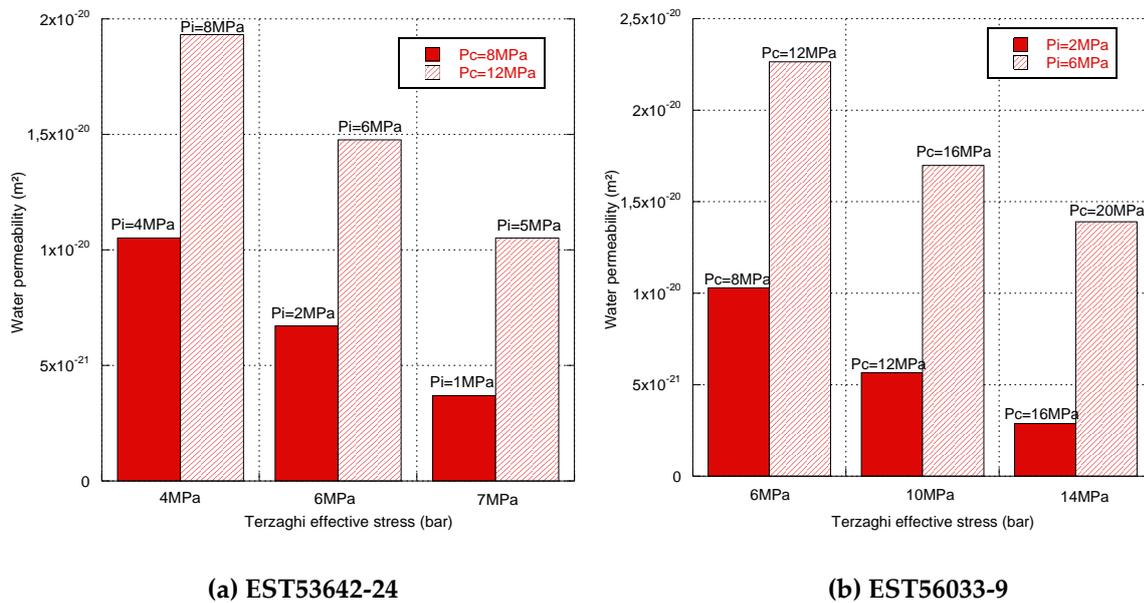


Figure 5.6 - Evolution de la perméabilité à l'eau avec le stress efficace de Terzaghi

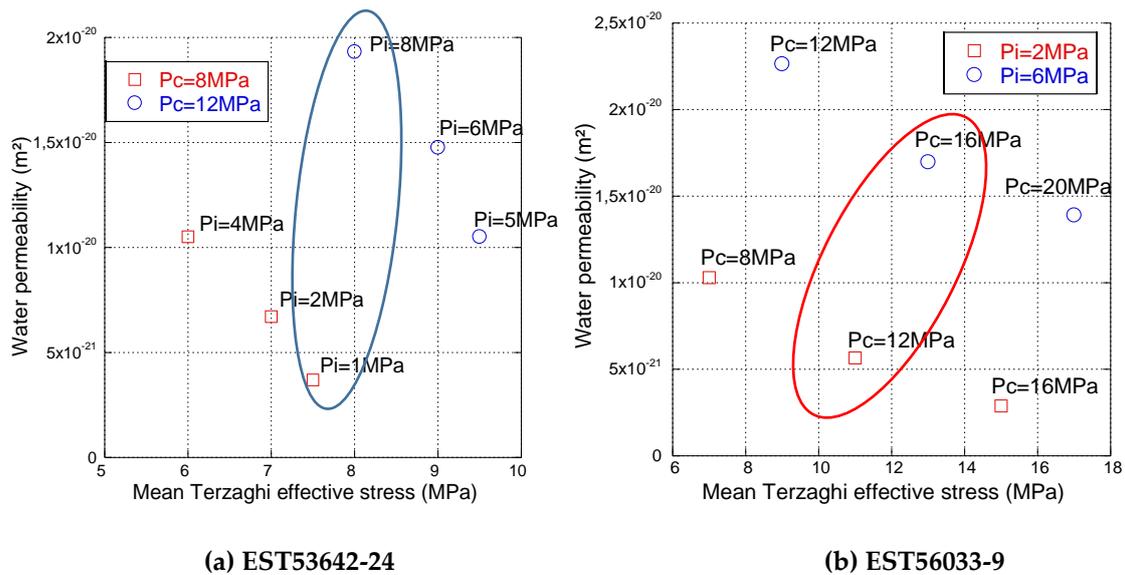


Figure 5.7 - Perméabilité à l'eau en fonction de la contrainte moyenne de Terzaghi

A titre d'exemple nous avons finalement représenté la perméabilité à l'eau en fonction de la contrainte moyenne de Terzaghi. En supposant un gradient de pression linéaire dans l'échantillon nous admettons que celle-ci vaut $P_c - P_i/2$. Avec cette représentation on voit bien l'effet amplificateur de la pression de pore sur la perméabilité. En particulier on remarque dans la figure 5.7(b) qu'à plus ou moins 12MPa de pression effective le changement du gradient de pression peut faire varier par un facteur de 3.

5.4.4 Tentatives de mesure du coefficient de Biot « à l'eau »

Nous appelons cette dernière partie « tentatives » car elle a été jalonnée de problèmes successifs. Le premier problème qui s'est posé pour mesurer le coefficient de Biot de l'argilite saturée est purement matériel. Pour obtenir une mesure fine de la déformation et avoir un outil de comparaison avec les mesures au gaz, il nous a paru nécessaire de poursuivre avec des jauges. Pour conserver un temps d'essais raisonnable, les jauges ont été placées sur des petits échantillons ayant des dimensions de 20mm de diamètre et 40mm ou 25mm de hauteur, issus des cellules EST51446-33, EST51446-34, EST56033-18. Malgré une préparation de surface à partir d'une résine spéciale, l'ensemble résine et jauges semble se dégrader pendant le processus de saturation et les jauges se décollent fréquemment de l'échantillon. Il se pose de plus, comme nous l'avons déjà indiqué, le problème d'une saturation avérée du matériau. Nous n'avons donc obtenu que quelques résultats (2 à 3) pour plusieurs conditions de chargement. N'apparaissent donc dans la figure 5.8 que les résultats significatifs. On peut voir, bien que les résultats soient un peu dispersés car variant de 0.94 à 1.24, que le coefficient de Biot est proche de 1. Ils sont finalement en accord avec les résultats obtenus par Belmokhatr⁶¹, qui a évalué des valeurs de 0.85 à 0.98 et ils ne contredisent pas ceux que nous avons obtenus

avec l'hélium. Il est donc nécessaire de multiplier les essais malgré la difficulté qu'ils présentent, c'est aussi un de nos objectifs.

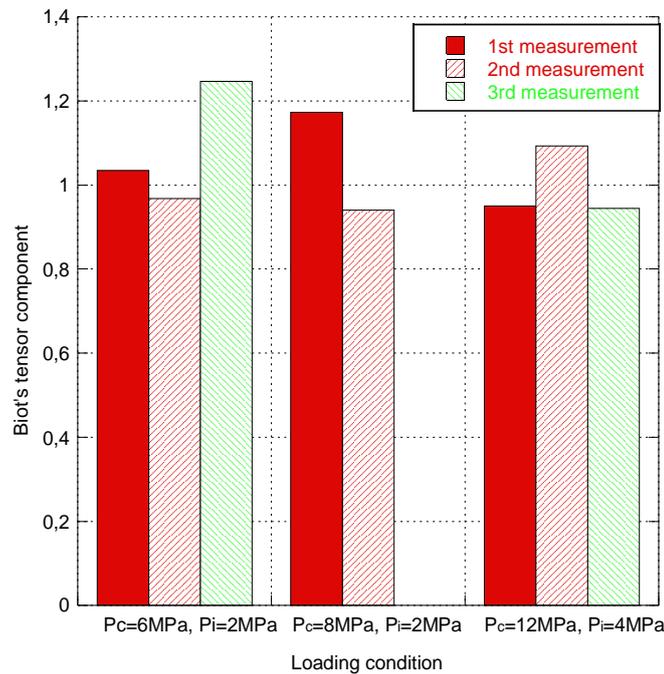


Figure 5.8 - Les résultats du Biot's coefficient de l'échantillon EST51446-34 mesuré par l'eau

5.5 Conclusion

L'argilite présentant de fortes propriétés de gonflement, il s'avère difficile de la saturer de manière homogène par humidité relative, nous avons donc utilisé une méthode par injection d'eau dans cette étude. Du fait de la faible perméabilité du matériau, il a été choisi d'utiliser un échantillon de petite dimension et une métrologie (pompe seringue) de haute précision pour mesurer les volumes d'eau injectés. Les résultats montrent que la perméabilité mesurée avec de l'eau pure est d'environ 10^{-20} à 10^{-21} m², elle semble un peu plus faible 10^{-21} m² lorsqu'elle est mesurée avec de « l'eau de site » reconstituée. Cette faible différence n'est pas très significative et il reste que ces résultats restent éloignés des mesures sur site. Certains paramètres qui influencent généralement l'écoulement ont été modifiés et les résultats montrent que la perméabilité à l'eau est plus sensible à la pression d'injection d'eau qu'au confinement effectif de Terzaghi. Nous en déduisons que le coefficient de contrainte effective, au sens de la perméabilité est supérieur à 1 mais il reste de nombreux essais à effectuer. Ils font partie de nos perspectives proches.

Quelques résultats ont pu être obtenus sur le coefficient de Biot par l'injection d'eau, mais en nombre très limité, car les tests poromécaniques à l'eau sont particulièrement délicats à mettre en œuvre (stabilité de la métrologie, temps de saturation considérable et incertitudes sur son homogénéité). Les tests « réussis » semblent néanmoins confirmer une valeur du

coefficient de Biot proche de 1 comme pour les essais à l'hélium. Des essais supplémentaires doivent cependant être mis en œuvre pour renforcer cette constatation car nous estimons que ces résultats sont d'une fiabilité faible.

Chapitre 6 Etude préliminaire des effets thermiques sur les propriétés poromécaniques et de transport de l'argilite

6.1 Introduction

Autour du stockage de déchets HAVL, la roche dans cette zone, mais aussi au-delà, subira inévitablement un chauffage dû au dégagement de chaleur des déchets. Cet effet thermique va provoquer une dilatation du matériau. Cependant, en raison de l'hétérogénéité de leur composition minéralogique et multiphasique (solide, eau, gaz, etc.), les capacités de dilatation de ces constituants sont très différentes. Donc, quand le matériau est chauffé, sa très faible perméabilité engendre une mise en pression de l'eau qui se dilate beaucoup plus que les constituants solides. Cette déformation induite par les différences de capacités de dilatation joue un effet sur les comportements du matériau (mécanique, transport, etc.). D'autre part, il n'y pas beaucoup d'études sur la réponse de l'argilite aux effets de couplage thermique, hydraulique et mécanique (*THM coupling*). Par conséquent, afin d'en permettre une meilleure compréhension, il est nécessaire d'étudier les effets thermiques sur les propriétés de transport et les comportements (poro)mécaniques de l'argilite.

Dans ce chapitre, nous présentons les résultats d'une étude expérimentale du comportement thermo-hydro-mécanique de l'argilite, en particulier les propriétés poro-élastiques et la perméabilité au gaz. Dans cette étude, on a utilisé un nouveau dispositif d'essais sous température contrôlant automatiquement, à un niveau stable, le confinement afin de compenser son augmentation due au chauffage. Tout d'abord, un essai de chauffage non drainé est effectué sur un échantillon saturé afin d'étudier son influence sur la pression de pore. Ensuite, une autre série d'essais est réalisée sur des échantillons à différentes HR pour en mesurer la perméabilité au gaz sous différentes températures et confinements afin d'évaluer les couplage THM et les propriétés de transfert du gaz dans ce matériau. En outre, ayant mesuré le coefficient de Biot à différentes HR, confinements et pressions d'injection (cf. chapitre 2), ce chapitre en aborde l'étude sous conditions thermiques variables. Il faut souligner ici que cette étude constitue juste une étude initiale car les couplages « dangereux » pour le matériau résident dans les contrastes de dilatation entre l'eau et la roche. Les surpressions qui en découlent peuvent amener une fracturation de celle-ci. On voit bien le lien entre tous les phénomènes : dilatation thermique (éventuellement liée à une modification des propriétés de la roche), surpression de l'eau, dissipation continue (mais avec quelle cinétique ?) selon sa perméabilité à l'eau et effet de contraintes internes relatif au coefficient de Biot. Tout ceci nécessite une étude plus approfondie qui doit à terme être conduite.

6.2 Essai de chauffage non drainé – EST51446-34

6.2.1 Dispositif expérimental

Cet essai a été mené sur l'échantillon EST51446-34, resaturé en eau de site (les détails du processus sont décrits dans le dernier chapitre). Après des essais de perméabilité à l'eau à température ambiante, la cellule est placée dans une étuve à température régulée de 20 °C à 100 °C. Le chauffage de la cellule entraîne une augmentation de la température du système mais aussi de la pression de l'huile de confinement qui entraînera, elle-même, une pression supplémentaire sur l'échantillon, susceptible d'affecter les résultats de l'essai. Nous avons conçu, afin de pallier ce problème, un système automatique de régulation de cette pression de confinement. Celui-ci est constitué d'une pompe Gilson (Pression régulée) et d'un robinet à débit-contrôlé (cf. figure 6.1). Pendant le chauffage de l'étuve, le robinet à débit-contrôlé est réglé à une valeur permettant par une "fuite" continue de l'huile afin de maintenir un équilibre dynamique du confinement. De plus, un capteur de température est utilisé pour surveiller et acquérir la température de l'échantillon. Une deuxième pompe Gilson applique la pression d'injection dans le réseau poreux tandis qu'un manomètre, relié à un PC, enregistre la pression de pore.

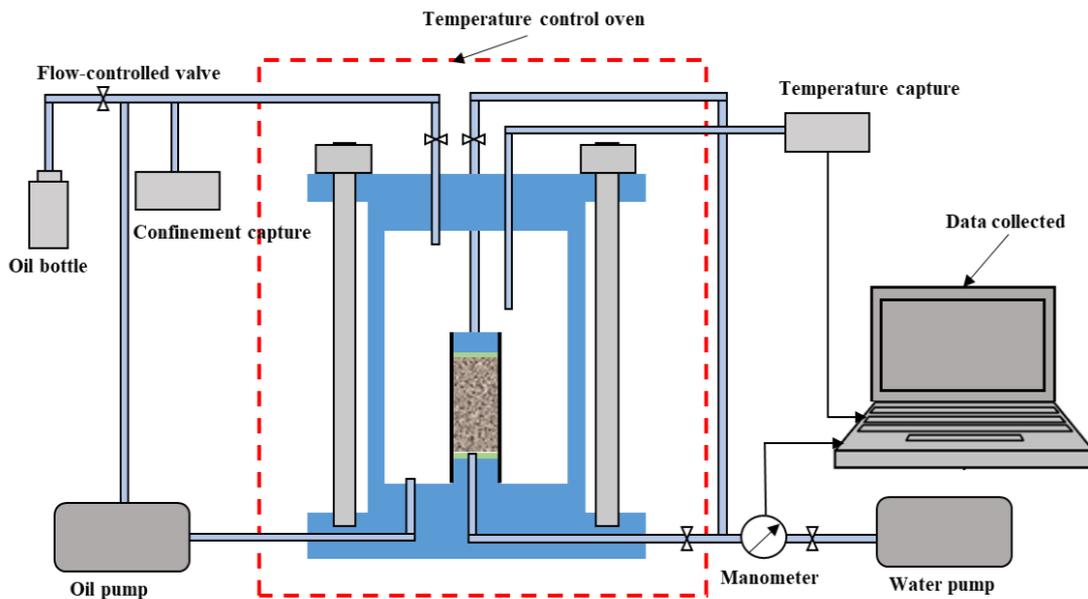


Figure 6.1 - Schéma de principe du dispositif d'essai de chauffage non drainé

6.2.2 Méthodologie expérimentale

Afin d'étudier la variation de pression de pore provoquée par le chauffage de l'argilite, un test a été réalisé en effectuant un essai non drainé de suivi de la pression de pore pendant le processus de chauffage. La procédure est la suivante :

(1) Après la fin d'un essai de perméabilité à l'eau, la cellule est placée en étuve. Une variation de confinement de 6MPa à 12MPa est appliquée (confinement proche du cas in-situ), tandis que la pression de pore est maintenue à 0MPa. Les déformations de l'échantillon sont enregistrées en continu par des jauges de déformation.

(2) Après stabilisation des jauges, (le réseau poreux est en équilibre), le système de régulation automatique du confinement est activé. Une pression d'injection d'eau $P_i = 1\text{MPa}$ est utilisée comme point de départ, cela permet d'observer plus facilement le changement de pression de pore pendant le chauffage. Après une nouvelle stabilisation des jauges, les vannes haute et basse sont fermées afin de créer un état non drainé, le chauffage de l'échantillon peut démarrer. La température, le confinement, la pression de pore et la déformation des jauges sont alors enregistrés en continu jusqu'à la fin de l'essai.

Remarque : inévitablement cet essai comporte certains défauts mais difficiles à contrecarrer. Pour pouvoir mesurer l'augmentation de la pression de pore, il faut mettre en contact l'échantillon avec un système extérieur qui a son propre comportement en température et qui donc va générer par lui-même une variation de pression. La surpression enregistrée est donc une combinaison de l'ensemble des effets (montage + échantillon+ drainage partiel) même si elle représente aussi celle qui, à l'équilibre, règne dans l'échantillon.

6.2.3 Résultats et analyses

La figure 6.2 présente les variations de confinement, de pression de pore et de température pendant le processus le chauffage. Elle montre que le confinement reste très stable pendant la montée en température de 20 °C à 90 °C, cela prouve que le système de régulation automatique du confinement fonctionne correctement, permettant ainsi la poursuite des essais thermiques. De plus, on observe que la pression de pore variant de 1MPa (pression initiale) à 9.25MPa augmente avec la température (de 20 °C à 90 °C). Le même phénomène a également été observé par Mohajerani²¹ avec de l'argilite du COx, (variation de 4 à 9MPa de la pression de pore pour une variation de 30 °C à 90 °C), et Monfared¹¹⁷ avec de l'argilite d'Opalinus, (variation de 2,2 à 3.8MPa de la pression de pore pour une variation de 25 °C à 55 °C). Ces pressions de pores induites par la chaleur sont causées par les différences de dilatation thermique de l'eau et des minéraux composant l'argilite.

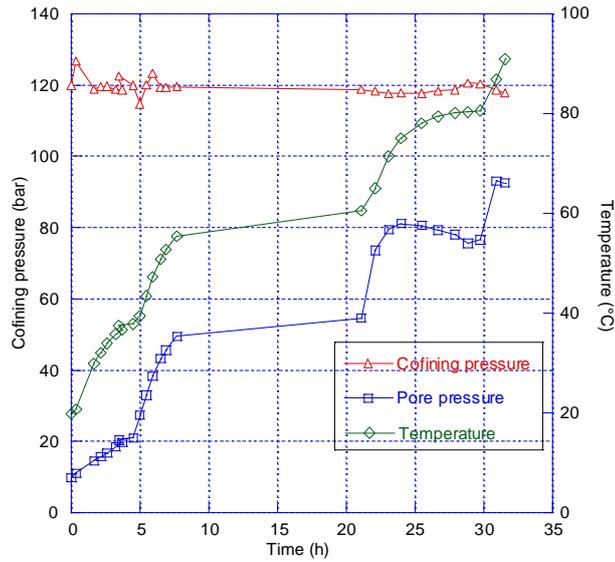


Figure 6.2 - Variation du confinement, de la pression de pore et de la température pendant le processus de chauffage

Comme indiqué dans les parties précédentes, le coefficient de Biot de l'argilite COx est presque égal à 1. Donc une valeur de $b = 1$ est utilisée ici pour évaluer la variation de la contrainte effective avec la température. Logiquement, la figure 6.3 montre que l'état de contrainte au sens de Terzaghi diminue avec la température pendant le chauffage. Il diminue de 11MPa à 2.5MPa pour une variation de 20 °C à 90 °C. Cela signifie que l'effet thermique en provoquant une augmentation de la pression de pore peut amener le matériau jusqu'à un état proche du dé-confinement effectif et qu'en l'absence totale de drainage il est envisageable d'avoir un « claquage » du matériau. C'est en cela que connaître avec précision la perméabilité à l'eau révèle son importance.

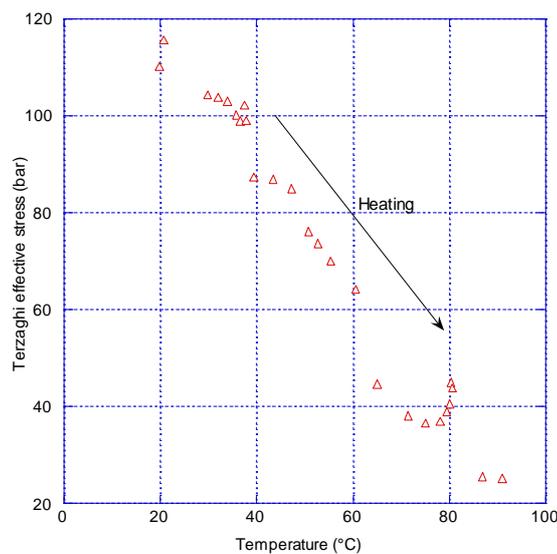


Figure 6.3 - Relation entre la contrainte de Terzaghi et la température

A partir des résultats donnés dans la figure 6.2, il est possible d'estimer un coefficient de pressurisation thermique $\delta_u = \frac{\Delta P_i}{\Delta T}$. Ce coefficient permet d'évaluer l'augmentation de pression en conditions non drainées et à contrainte moyenne constante (due à une élévation de température). Les résultats de ce calcul sont indiqués dans la figure 6.4. Si on excepte les deux points entre 70 et 80°C qui manifestement sont mauvais, on obtient une valeur assez stable mais décroissante, avec la température, de ce coefficient. Ceci confirme certains résultats obtenus par Mohajerani⁷⁹. La valeur théorique de ce coefficient donne :

$$\delta_u = \frac{\phi(\alpha_w - \alpha_s)}{(C_d - C_s + \phi(C_w - C_s))}$$

Les coefficients qui interviennent sont de type compressibilité des phases fluide et solide (squelette et matrice) et coefficients de dilatation volumique (fluide et matrice). Le fait que δ_u ne soit pas constant peut venir de plusieurs origines : les coefficients de compressibilité peuvent varier avec la température, le coefficient de dilatation de l'eau est réputé aussi variable avec la température, le comportement du matériau n'est pas linéaire, le montage expérimental introduit un artefact (mentionné plus haut). Si par exemple le squelette s'assouplit avec la température alors C_d augmente et δ_u diminue. Il est aussi possible que la compressibilité de la matrice solide soit affectée par la température. Notons enfin que le calcul de δ_u est de nature isotrope qui n'est pas le cas de l'argilite.

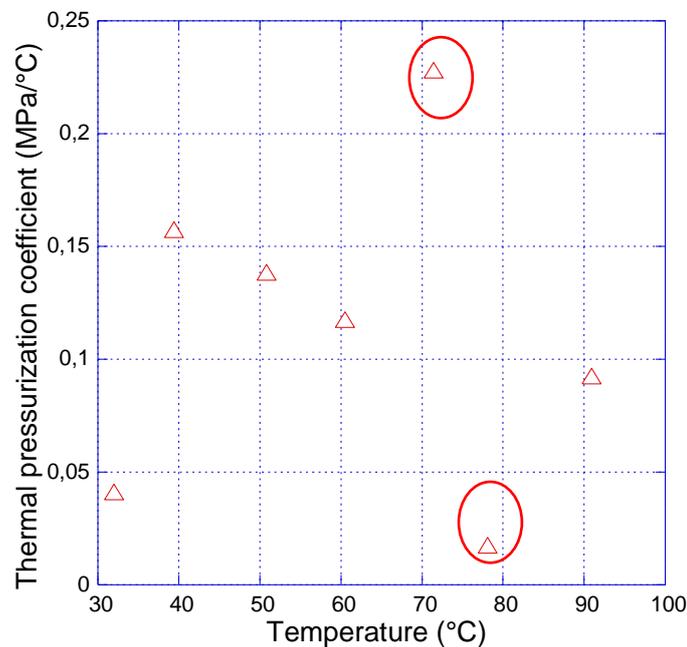


Figure 6.4 - Relation entre le coefficient de pressurisation thermique et la température

La déformation volumétrique avec l'augmentation de température est présentée dans la figure 6.5. Son augmentation avec température indique que le chauffage induit une évidente (et non surprenante) dilatation. Le coefficient de dilatation thermique non drainé du matériau

α_u peut être obtenu par: $\alpha_u = \frac{\Delta \varepsilon_V}{\Delta T}$ (i.e., la pente de la courbe déformation volumétrique *vs* température). En tendance générale on obtient $\alpha_u = 1,18 \times 10^{-4} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ avec les courbes linéaires ajustées issues de la figure 6.5. Cette valeur est proche de celle obtenue par Monfared avec l'argilite d'Opalinus¹⁷. Celui-ci a mesuré une variation de α_u de $1.46 \times 10^{-4} / ^\circ\text{C}$ à $1.81 \times 10^{-4} / ^\circ\text{C}$ pour une variation de 25 °C à 55 °C. En outre, on peut voir qu'une diminution très importante s'est produite entre 50 °C et 60 °C, peut être causée par une dissipation de la pression de pore.

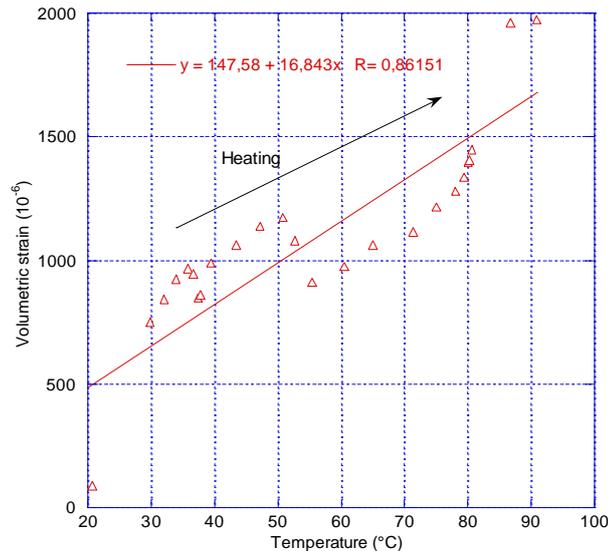


Figure 6.5 - Variations des déformations volumétriques pendant les essais de chauffage non drainé

6.3 Essai de chauffage drainé – Mesure du coefficient de Biot et perméabilité au gaz

Cette partie s'intéresse plus particulièrement, par des techniques gaz, à la mesure des coefficients de Biot (à l'hélium et à l'argon) sous température et à l'effet de celle-ci sur la perméabilité au gaz (à l'hélium pour éviter les phénomènes parasites d'adsorption).

6.3.1 Dispositif expérimental

Le gaz a été utilisé pour appliquer la pression de pore de cette étude. Le dispositif expérimental a dû être un peu modifié pour réaliser ces essais de chauffage. Le système de pression d'eau a été remplacé par un réservoir de gaz pour fournir la pression de pore, et un manomètre installé pour mesurer la perméabilité au gaz. La figure 6.6 présente le schéma de principe du dispositif et la figure 6.7 en présente une vue réelle.

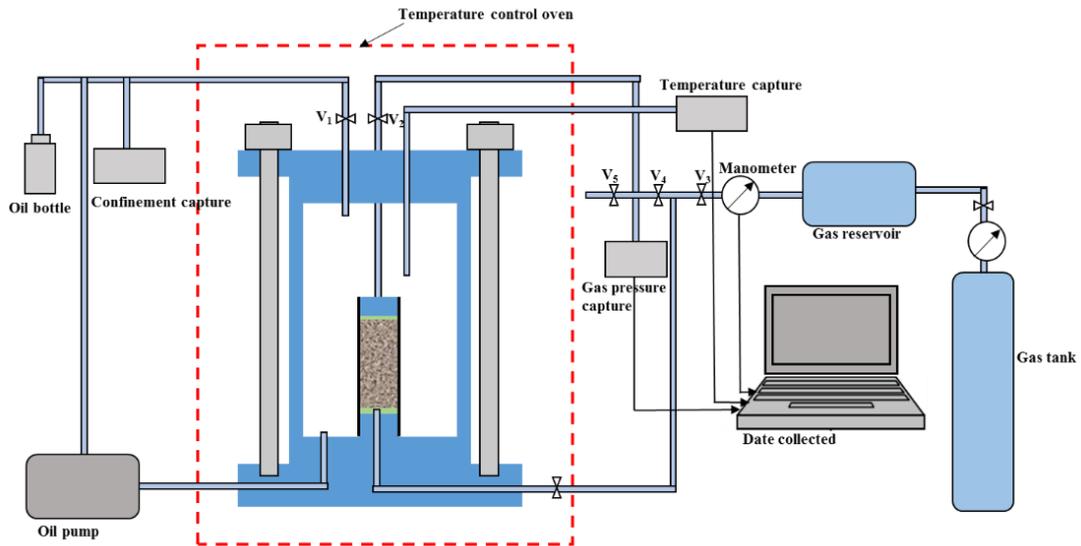
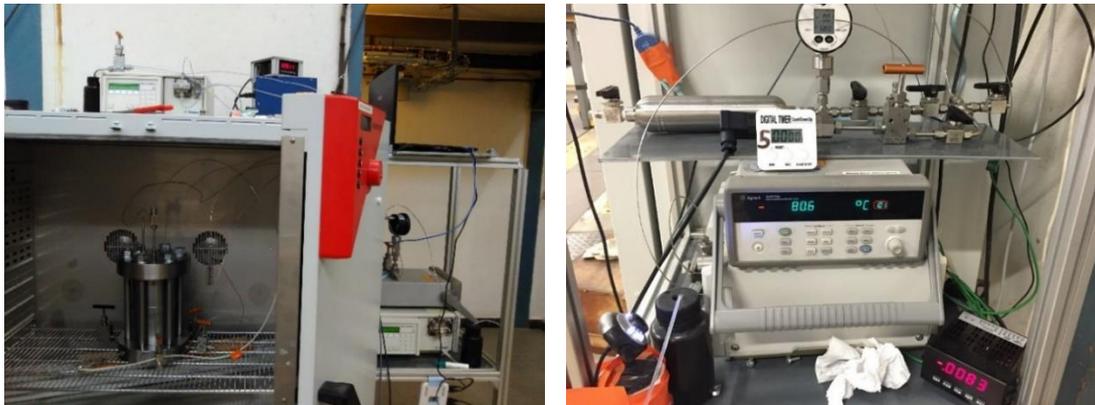


Figure 6.6 - Schéma de principe du dispositif des essais de chauffage drainé



(a)

(b)

Figure 6.7 - Photos du dispositif des essais de chauffage drainés. (a) Photos du dispositif; (b) système de pression des pores.

6.3.2 Méthodologie expérimentale

Des échantillons issus de différentes carottes et à différentes HR ont été utilisés pour effectuer les essais poromécaniques et de perméabilité sous température. Les caractéristiques principales des échantillons testés sont présentées dans le tableau 4.1. 4 ou 5 niveaux de température (20 °C, 40 °C, 60 °C, 80 °C et/ou 90 °C) sont mis en oeuvre pour chaque échantillon. Pour chaque température, l'essai poromécanique est effectué avant l'essai de perméabilité, car celui-ci utilisant un confinement jusqu'à 16MPa, pourrait changer la structure interne de l'échantillon.

La procédure des essais poromécaniques est identique à la procédure décrite au chapitre 3. Trois conditions de chargement (i.e, $P_c = 8\text{MPa}$, $P_i = 2\text{MPa}$; $P_c = 12\text{MPa}$, $P_i = 2\text{MPa}$; $P_c = 12\text{MPa}$,

$P_i = 4\text{MPa}$) ont été utilisées pour chaque échantillon, à l'exception de certains cas particuliers. La procédure pour les essais de perméabilité est identique à celle décrite dans le chapitre 2. Le dispositif de mesure du débit volumique de gaz est installé à température constante dans la pièce d'essais, on mesure donc un débit qui doit être corrigé pour donner celui qui entre réellement dans l'échantillon (la température est écrite ici en Kelvin) sous température. Les essais se déroulent à l'hélium qui est assimilable à un gaz parfait dans les gammes de pression et de température considérées. On a donc corrigé le débit volumique de gaz $Q_v(T_K)$:

$$Q_v(T_K) = Q_v(T_0 = 293,15) \times \frac{T_K}{293,15} \quad (6.1)$$

Où T_K est la température en kelvin, et $Q_v(293,15)$ est calculé par :

$$Q_v(T_0 = 293,15) = \frac{V_t \Delta P}{P_{mean} \Delta t} \quad (6.2)$$

La perméabilité K est donnée par :

$$K = \mu(T_K) \times \frac{Q_v(T_K)}{A} \times \frac{2LP_{mean}}{P_{mean}^2 - P_0^2} \quad (6.3)$$

Pour la viscosité de l'hélium, on pourra adopter une relation approchée classique :

$$\mu(T_K) = \mu(T_0 = 293,15) \times \left(\frac{T}{T_0}\right)^{0,71} \quad (6.4)$$

Dans ces relations P_{mean} est la pression d'injection, P_0 celle de drainage.

Tableau 4.1 - Caractéristiques principales des échantillons testés

Réf. de l'échantillon	Dimensions		Densité initial (g/cm ³)	HR (%)	Température	Type d'essai
	Diamètre (mm)	Hauteur (mm)				
EST53642-4	19.47	41.43	2.39	0	20°C, 90°C	Poromécanique
EST51334-1	19.41	41.80	2.33	0	20°C, 40°C, 60°C, 80°C, 90°C	Poromécanique, perméabilité au gaz
EST53642-3	19.46	41.36	2.38	59	20°C, 40°C, 60°C, 80°C	Poromécanique, perméabilité au gaz
EST51446-43	19.57	40.72	2.33	73	20°C, 40°C, 60°C, 80°C	Poromécanique, perméabilité au gaz
EST52591-1	19.55	40.48	2.37	85	20°C, 40°C, 60°C, 80°C	Poromécanique
EST56033-14	19.47	39.64	2.40	85	20°C, 40°C, 60°C, 80°C, 90°C	Poromécanique, perméabilité au gaz

EST56033-1	19.40	39.62	2.41	92	20°C, 40°C, 60°C	Poromécanique
------------	-------	-------	------	----	------------------	---------------

6.3.3 Mesure du coefficient de Biot

6.3.3.1 Mesures préliminaires à l'argon et l'hélium

L'argon et l'hélium ont été employés pour mesurer, en premier lieu, le coefficient de Biot de l'argilite pour deux paliers de 20 °C et 90 °C. La figure 6.8 présente les résultats de l'essai pour l'échantillon EST53642-1 (HR = 0%, $P_c = 12\text{MPa}$ et $P_i = 4\text{MPa}$). Les composantes du tenseur de Biot mesuré à l'hélium sont proches, mais un peu inférieures à 1. En revanche, les composantes sont un peu supérieures à 1 pour les mesures à l'argon. Ces résultats sont conformes aux résultats obtenus dans le chapitre 3. Comme on l'a vu précédemment, afin d'éliminer l'effet d'adsorption, nous utilisons l'hélium, pour appliquer la pression d'injection, dans les essais suivants. On peut aussi observer avec l'argon une diminution des composantes du tenseur de Biot avec l'augmentation de la température. L'explication vient d'une moindre adsorption à température élevée donc moins de gonflement. Avec l'hélium on mesure une légère augmentation de ces mêmes composantes mais elles sont difficiles à interpréter à ce stade et elles ne sont pas très significatives.

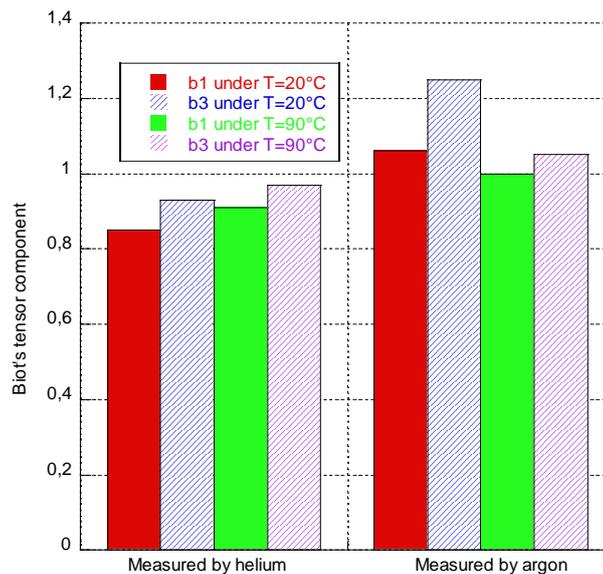
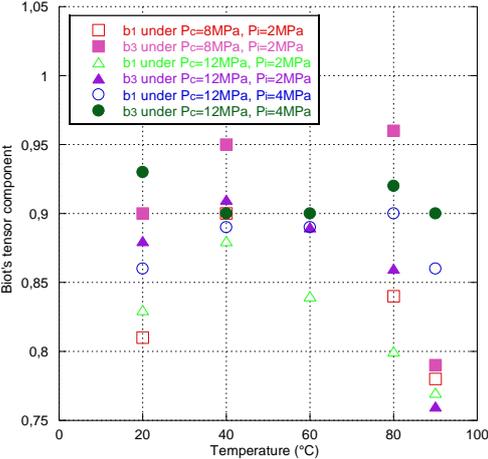


Figure 6.8 - Composantes du tenseur de Biot mesurées à l'hélium et à l'argon, à 20 °C et 90°C

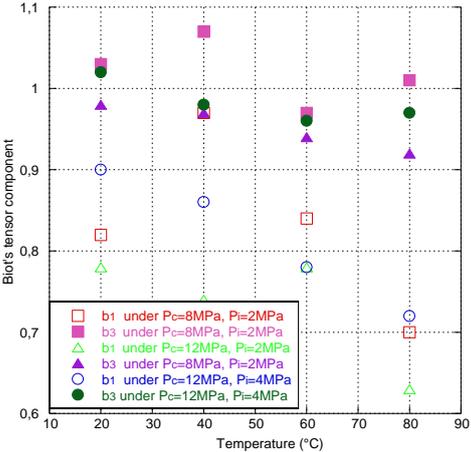
6.3.3.2 Mesures complémentaires à l'hélium

Afin d'étudier plus complètement l'évolution du coefficient de Biot, on a effectué une série d'essai poromécaniques aux paliers de température 20 °C, 40 °C, 60 °C, 80 °C et 90 °C. Ces essais ont été menés à l'hélium du fait de son caractère non-absorbable (voir ci-dessus). Les résultats sont présentés dans la figure 6.9. Tout d'abord, on peut observer que la plupart des valeurs mesurées des composantes à différentes températures et HR sont inférieures à 1,

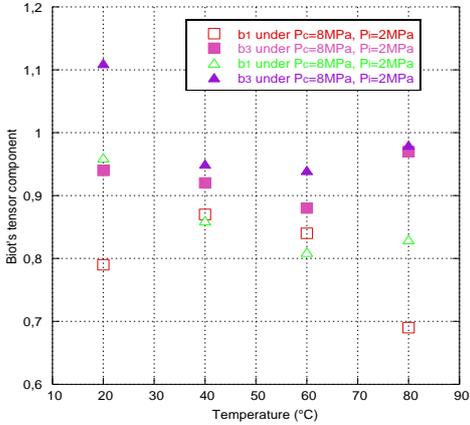
certaines sont légèrement supérieures mais attribuées aux incertitudes et difficultés expérimentales. Les valeurs cohérentes des composantes (inférieures à 1) varient de 0.7 à 1 à 20°C. Les composantes b_1 et b_3 montrent des caractéristiques anisotropes, en particulier pour les échantillons à haute HR. Ce qui n'est pas le cas des valeurs mesurées à l'argon (isotropes sur matériau humide et à température ambiante (cf. chapitre 3). L'hélium est un gaz non-adsorbable, donc ne provoquant pas de déformation supplémentaire, mais il donne ici des composantes dont l'anisotropie est plus marquée. A ce stade il est difficile de conclure sur cet aspect et sur l'origine de la « réapparition » de l'anisotropie (malgré tout d'amplitude assez faible) quand le matériau est chauffé. Les composantes mesurées à différentes températures sont très dispersées et il ne semble pas y avoir de tendance évidente de variation du coefficient de Biot avec la température. On peut aussi souligner la difficulté à mener ce type d'essais car il est possible que la température associée avec des cycles de charge et décharge utilisant du gaz sec modifie un peu la saturation du matériau au cours du test. On peut également suspecter dans ces conditions de chauffage et d'humidité que le collage des jauges souffre un peu. Quoi qu'il en soit, cet ensemble d'expériences confirme que la valeur des composantes du tenseur de Biot reste très proche de 1 pour toutes ces conditions expérimentales.



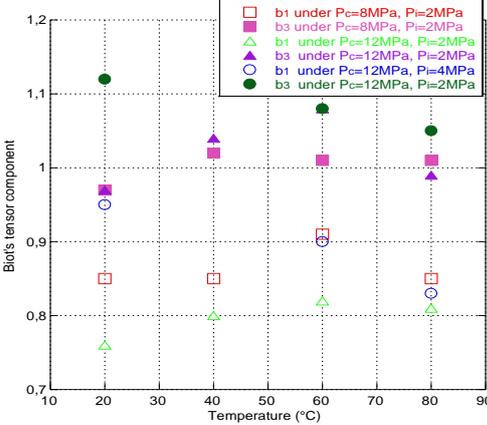
(a)



(b)



(c)



(d)

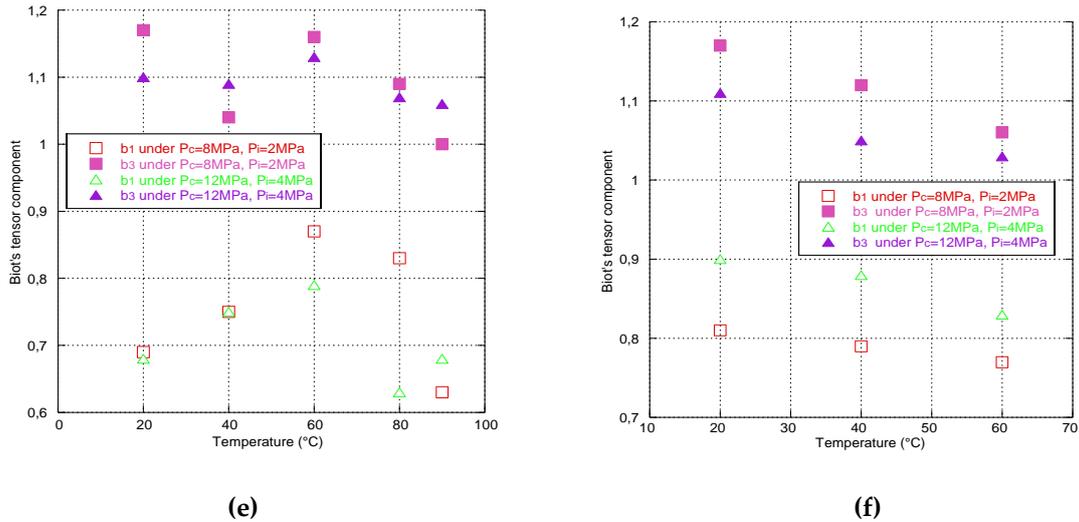


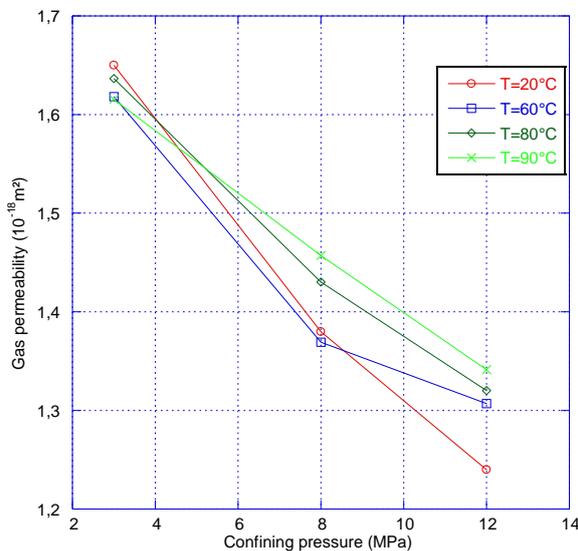
Figure 6.9 - Composantes du tenseur de Biot mesurées à l'hélium à différentes températures. (a) EST51334-1 HR = 0 %, mesurées de 20 °C à 90 °C ; (b) EST53642-3 HR = 59 %, mesurées de 20 °C à 80 °C ; (c) EST51446-43 HR = 73 %, mesurées de 20 °C à 80 °C ; (d) EST52591-1 HR = 85 %, mesurées de 20 °C à 80 °C ; (e) EST56033-14 HR = 85 %, mesurées de 20 °C à 90 °C ; (f) EST56033-1 HR = 92 %, mesurées de 20 °C à 60 °C.

6.3.4 Perméabilité au gaz

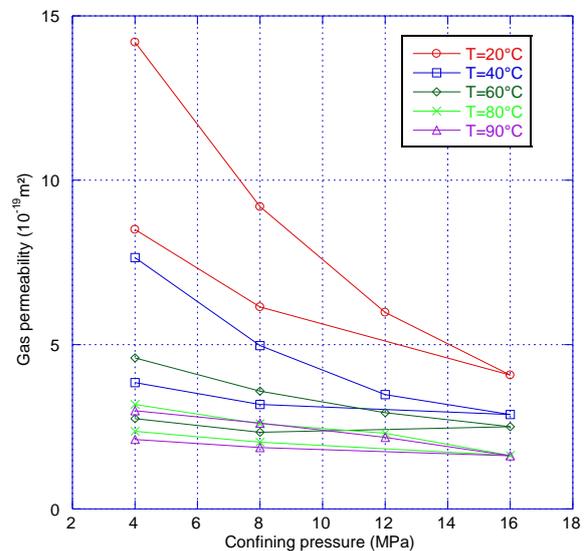
Nous présentons ici quelques résultats sur la perméabilité au gaz qui ont été obtenus à la fin de ce travail expérimental. L'objectif était de visualiser à la fois les effets de la température pour des échantillons de plus en plus saturés et soumis à confinement. Le fait de combiner simultanément l'ensemble des phénomènes s'est révélé contreproductif car la combinaison des effets ne permet pas de conclure valablement. Nous avons néanmoins choisi de donner quelques résultats qui donnent des tendances importantes. Un autre programme sera lancé consistant à ne faire varier que la température pour un confinement donné (par exemple 12MPa) sur des échantillons à différents niveaux de saturation. C'est ce point qui est essentiel in-situ car le confinement sur site devrait être relativement constant.

En raison de problèmes techniques, la perméabilité n'a été mesurée que pour les échantillons EST51334-1, EST53642-3, EST51446-43, EST56033-14. La figure 6.10 présente les résultats. On observe une grande variation de perméabilité selon les confinements et les températures. L'effet de la saturation en eau est classique et entraîne une diminution notable de la perméabilité effective, deux ordres de grandeur entre le matériau sec et celui équilibré à 92% d'humidité relative. Il y a aussi un effet très net du confinement qui va ici jouer plusieurs rôles : fermeture des fissures et réduction de taille des pores, redistribution de l'eau libre qui peut entraîner une variation de l'accessibilité du gaz à certains pores. Tout ceci entraîne une diminution importante de la perméabilité avec la température.

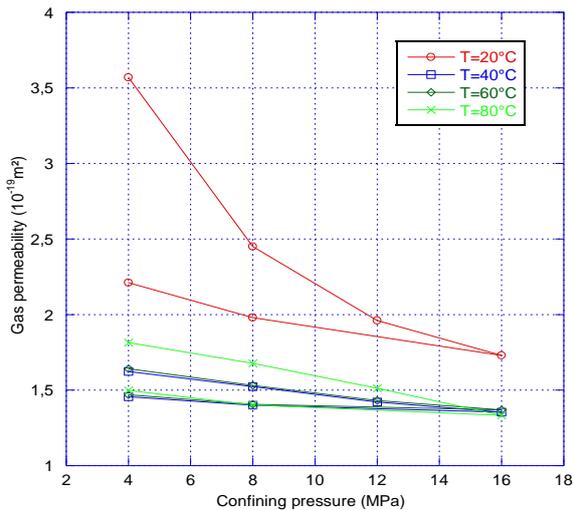
La température a des effets différents selon la saturation (mais cela devra être vérifié par des essais à confinement constant, menés sur le même échantillon). Sur le matériau sec elle n'a pas d'influence notable, la figure 6.10(a) montre que les perméabilités à HR = 0 % mesurées à différentes températures sont très proches. Cela s'explique par l'absence d'eau suite au séchage à 60 °C initial en étuve. Par conséquent, le re - chauffage, même un peu plus élevé, ne doit pas affecter la structure interne de façon significative. Les résultats indiquent également qu'il n'y a pas de fissuration supplémentaire et significative induite par le chauffage, en effet elle se traduirait par une sensibilité accrue envers le confinement. Par rapport à l'état sec, les échantillons partiellement saturés ont un comportement différent. La figure 6.10(b) montre que la perméabilité à HR = 59 % diminue avec l'augmentation de la température. Cette diminution pourrait s'expliquer ici par la dilatation relative plus élevée de l'eau par rapport au squelette ce qui au bilan entrainerait une saturation plus élevée. A HR = 73 % (figure 6.10(c)) on a d'abord une diminution de la perméabilité avec la température entre 20 et 60°C (elle se stabilise entre 40 et 60°C) puis elle augmente légèrement à 80°C. Ce phénomène a déjà été observé sur des matériaux cimentaires lors d'expérimentations menées au laboratoire. On peut penser qu'à température plus élevée l'eau qui s'évapore est entraînée par le flux de gaz et cela conduit à une diminution de la saturation – donc à une augmentation de la perméabilité au gaz. Finalement, la figure 6.10(d), montre que la perméabilité à HR = 85 % augmente constamment avec la température. On peut donc suspecter ici que la saturation de l'échantillon diminue constamment au cours de ce test.



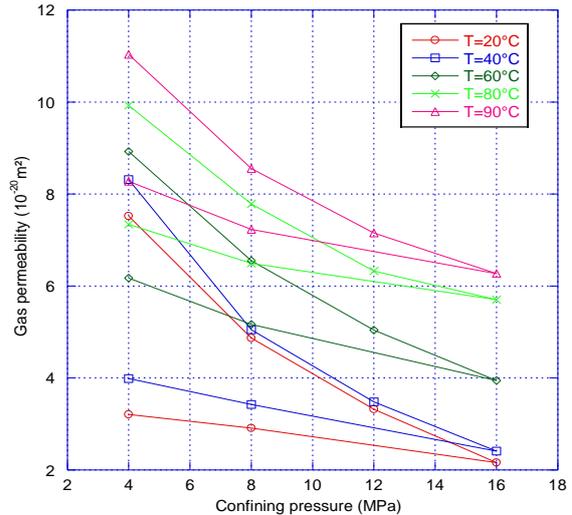
(a)



(b)



(c)



(d)

Figure 6.10 - Perméabilités à l'hélium à différentes températures. (a) EST51334-1 HR = 0 %, mesurée de 20 °C à 90 °C ; (b) EST53642-3 HR = 59 %, mesurée de 20 °C à 80 °C ; (c) EST51446-43 HR = 73 %, mesurée de 20 °C à 80 °C ; (d) EST56033-14 HR = 85 %, mesurée de 20 °C à 90 °C.

Remarque : Cette étude préliminaire montre des effets contradictoires de la température sur la perméabilité. D'autres tests seront menés prochainement pour vérifier certaines hypothèses sur la perte de masse (désaturation du matériau) due au couplage flux de gaz et température. Cet aspect est important pour expliquer les effets observés. Quoi qu'il en soit la température ne bouleverse pas les ordres de grandeur de la perméabilité entre 20 et 90°C.

6.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons conçu un nouveau dispositif d'essai sous température à confinement stabilisé et contrôlé automatiquement. Cela a permis de mener quelques tests préliminaires sur la pressurisation de l'eau dans le matériau suite au chauffage, sur la mesure des coefficients de Biot et sur la perméabilité. Les études sur la pressurisation doivent impérativement être poursuivies en les couplant avec des essais de perméabilité à l'eau car elles sont d'une importance capitale in-situ. On arrive en effet, en laboratoire, à un état de contrainte effective de Terzaghi proche de 2.5MPa en partant de 11MPa à température ambiante. Cela traduit bien le risque de « claquage » du matériau suite à l'activité thermique intense de certains déchets HA-MAVL car la température du milieu va s'atténuer avec l'éloignement par rapport au tube métallique contenant les déchets.

Les essais poromécaniques, même s'ils sont perfectibles, ne contredisent pas les mesures conduites à température ambiante. Ils confirment la haute valeur des coefficients de Biot proche de l'unité.

Les essais de perméabilité au gaz, menés sous confinement variable, dégagent les tendances usuelles de la saturation et du confinement. La température (entre 20 et 90°C) a des

effets contradictoires sur la perméabilité sans pour autant modifier considérablement sa valeur. Ils seront néanmoins poursuivis à confinement constant avec un suivi plus fin de la saturation de l'échantillon au cours d'un même test. Ils seront néanmoins poursuivis à confinement constant avec un suivi plus fin de la saturation de l'échantillon au cours d'un même test. Il nous semble aussi intéressant de tenter quelques mesures de perméabilité à l'eau sous température pour approcher la réalité in-situ.

Chapitre 7 Conclusions et perspectives

7.1 Conclusions

Ce travail de thèse contribue à la caractérisation des propriétés poromécanique et de transfert de l'argilite du CO_x utilisée dans le contexte du stockage de déchets radioactifs en France. Il s'agissait de fournir des données expérimentales permettant d'évaluer pour la roche hôte le mécanisme de migration du gaz et de l'eau et l'effet de l'augmentation de la pression de pore. Dans ce cadre, nous avons effectués plusieurs études expérimentales sur une grande quantité d'échantillons issus de différentes carottes.

Le coefficient de Biot de l'argilite à l'état sec et partiellement saturé a été mesuré avec une technique d'injection de gaz argon, en suivant l'influence du confinement et de la pression de pore. Les premiers essais poromécaniques, menés sur des échantillons issus de deux cellule T1, ont clairement démontré que le tenseur de Biot était (quasiment isotrope) et ses composantes sont très proches de 1 lorsque le matériau est humide, et que le confinement et la pression porale n'y ont pas d'influence significative. Cependant, un résultat inattendu a été observé sur le matériau sec pour lequel ces mêmes composantes sont supérieures à 1. Ce point n'étant pas conforme à la théorie de la poroélasticité et après avoir écarté des causes mécaniques, nous sommes rapidement arrivés à l'hypothèse que ces valeurs « illogiques » pouvaient être dues à une déformation de gonflement suite à l'adsorption d'argon dans la microporosité. Cette hypothèse de l'effet de l'adsorption-gonflement a été confirmée par une comparaison des comportements à l'hélium (gaz non adsorbable) et à l'argon.

Afin d'étudier plus précisément ce phénomène, deux nouvelles séries d'essais ont été mises en œuvre. Il s'agissait d'observer plus finement celui-ci en « jouant » avec trois gaz : hélium, argon et CO₂. Ceux-ci ont été utilisés pour évaluer leur impact sur le couplage poromécanique, en particulier sur les composantes du tenseur de Biot mais aussi sur la perméabilité au gaz. L'emploi de deux autres matériaux : grès et mortier, a permis de montrer que les phénomènes « parasites » dus à l'adsorption étaient bien liés à la taille des pores les plus petits. La conduite de ces différents tests et les résultats qu'ils ont donnés ont montré effectivement que plus le gaz est adsorbable plus il y a de gonflement et plus les composantes du tenseur de Biot s'éloignent de leur valeur en l'absence d'adsorption. On passe ainsi d'une confirmation d'une valeur légèrement inférieure à 1 pour l'hélium à plus de 3 ou 4 pour le CO₂. D'autre part la mise en pression avec le gaz le plus adsorbable (CO₂) met en évidence de manière très sensible l'anisotropie du matériau. Ceci n'est pas le cas avec les autres gaz. Coté perméabilité au gaz, nous avons aussi pu mettre en évidence l'impact considérable de la nature du gaz injecté sur cette propriété qui perd, dans le cas de l'adsorption/gonflement tout caractère intrinsèque. On peut ainsi perdre deux à trois ordres de grandeur de perméabilité en passant de l'hélium au CO₂. L'argon se situe dans une zone intermédiaire. Cette constatation est de grande importance car elle signifie que dans toute simulation faisant intervenir de

l'écoulement gazeux (pour le matériau sec ou quasi sec), il faudrait tenir compte de la nature du gaz. Les essais sur matériaux à porosité plus large mais aussi beaucoup moins déformable que l'argilite n'ont pas montré d'impact très significatif de l'adsorption sur leurs propriétés.

Dans la partie suivante nous nous sommes penchés sur l'écoulement du gaz, l'hélium, dans le matériau partiellement saturé et confiné. Il s'agissait ici de revisiter les essais classiques de perméabilité effective et de mesure de saturation par des techniques gaz, susceptibles d'apporter un complément d'informations utiles sur le volume poreux accessible au gaz en saturation partielle. Ce volume poreux, n'est rien d'autre que la saturation au gaz quand il est normalisé par le volume poreux total, est en lien direct avec la perméabilité effective (ou relative). Deux séries d'échantillons en phase de séchage ou en phase d'imbibition ont été équilibrées sous différentes humidités relatives et leur porosité au gaz ainsi que leur perméabilité effective ont pu être mesurées sous confinement. L'analyse des résultats a montré une bonne corrélation sur la porosité totale mesurée par pesée ou au gaz. La porosité au gaz est cependant toujours supérieure à celle obtenue par pesée. Nous pensons que l'origine de cet écart réside dans la saturation complète à l'eau qu'il est difficile d'atteindre par humidité relative (même de 100% - eau pure) et dans le fait qu'il reste toujours du gaz piégé quand l'échantillon a vécu une phase de séchage, même partielle, avant d'être re-saturé. En revanche on a trouvé une très bonne corrélation entre la saturation à l'eau mesurée par pesée et celle déduite des essais au gaz. Ce n'est que vers les très fortes saturations qu'une différence se fait sentir pour les raisons invoquées plus haut. On a ensuite pu comparer la variation de saturation au gaz et de perméabilité relative en fonction du confinement pour différents niveaux d'équilibre en humidité. Aux variations logiques, diminution de ces deux propriétés quand la saturation en haut et le confinement augmentent, on peut ajouter que la saturation en gaz varie très peu quand on confine un échantillon sec ou peu saturé. La diminution de la perméabilité relative observée parallèlement n'est due qu'à de la fermeture de fissures et à l'augmentation de la tortuosité. On pense que cela crée aussi des pores « cul de sac ». Aux plus fortes humidités on a une variation beaucoup plus prononcée de saturation au gaz (et de perméabilité) avec le même confinement. La logique voudrait que cela soit dû à une plus grande déformabilité du matériau et à une redistribution de saturation en eau.

La perméabilité à l'eau a été l'objet de la partie suivante car on sait que cette propriété est cruciale au sens où elle est directement liée à la cinétique de la pressurisation de l'eau dans le réseau poreux en cas d'élévation de température. Celle-ci pouvant atteindre 90°C dans le voisinage des cellules de stockage des déchets HA-MAVL. La principale question est surtout de savoir pourquoi les essais de laboratoire donnent des valeurs beaucoup plus faibles qu'in-situ. L'ensemble des essais a donné une perméabilité comprise dans les ordres de grandeur 10^{-20} à 10^{-21} m². Cela reste une valeur très faible, beaucoup plus qu'au gaz. Dans les résultats on peut trouver que la pression d'injection paraît jouer un rôle relatif plus important que le confinement effectif de Terzaghi. La perméabilité s'exprimerait plutôt comme une fonction

$K_w(P_c - \lambda P_i)$, λ étant plus grand que 1. La composition de l'eau, eau pure/eau de site reconstituée semble jouer un peu mais cela reste à la marge par rapport à l'influence de la pression d'injection. Le nombre d'essais effectués n'est pas suffisant pour conclure réellement. En complément de cette partie, quelques de mesures du coefficient de Biot « à l'eau » ont été tentées. Beaucoup de problèmes de métrologie (collage de jauges en particulier) ne nous ont pas permis d'obtenir un panel suffisant de résultats. La tendance qui semble néanmoins s'en dégager est une valeur assez grande car proche de 1. Cette partie sera prolongée dans les perspectives.

Enfin une petite étude préliminaire sur les effets thermiques (jusqu'à 90°C) marque la fin (provisoire) de ces travaux. Il nous a été possible d'estimer un coefficient de pressurisation en conditions de confinement constant et non drainées. Ce coefficient de pressurisation est variable avec la température ce qui n'est pas illogique car il fait intervenir la dilatation volumique de l'eau qui n'est pas constante. Pour le matériau sec les coefficients de Biot, mesurés à l'hélium ou à l'argon ne montrent pas de différences particulières par rapport au cas de la température ambiante. Les essais de perméabilité au gaz, menés à différents niveaux de saturation, ne montrent pas de bouleversements particuliers sur son ordre de grandeur mais la température a parfois des effets contradictoires que l'on pourrait approfondir.

7.2 Perspectives

Dans les perspectives expérimentales immédiates, il nous paraît crucial de poursuivre les essais de perméabilité à l'eau pour obtenir deux réponses claires sur le rôle exact de la pression d'injection et de la minéralogie de l'eau qui peut jouer sur certains effets électrochimiques accompagnant l'écoulement. Nous proposons, sur des échantillons issus d'un même prélèvement, de concevoir un essai qui se déroulerait à pression d'eau moyenne variable mais avec un même gradient de pression. Cela permettra d'avoir une idée beaucoup plus claire sur les influences respectives de la contrainte effective moyenne de Terzaghi, de la pression moyenne et du gradient de pression. Ces essais pourront être menés avec des eaux pure ou minéralisées afin d'évaluer l'importance des effets électrochimiques. Comme cela concerne un problème d'ingénierie sous température, il semble logique de les mener aussi à différents niveaux de température. C'est une perspective ambitieuse qui sera gourmande en temps. Dans un second plan et malgré les difficultés à les conduire, il nous paraît important de poursuivre les mesures sur le coefficient de Biot du matériau saturé en eau et utilisant l'eau pour générer la pression de pore. Une fois mis au point, nous pensons prolonger cet essai dans le cas non isotherme. Enfin la mesure de la perméabilité au gaz sous température et saturation variables devra être poursuivie, mais sous confinement constant car dès lors, on pourra obtenir une vision plus nette des effets couplés entre ces deux paramètres. Les phénomènes d'adsorption repérés dans l'étude sont selon nous d'un grand intérêt physique car ils peuvent jouer sur la perméabilité au gaz et sur les coefficients de Biot apparents. Ils n'apparaissent pourtant pas

dans les perspectives prioritaires car vis à vis du stockage pour lequel l'argilite dans un état sec ne devrait jouer qu'un rôle marginal.

Reference

1. Andra. Dossier 2005 Argile. *Collection Les Rapports*. 2005.
2. Andra. Andra Project Cigéo *Collection Les Rapports*. 2015.
3. Liu J-F, Skoczylas F, Liu J. Experimental research on water retention and gas permeability of compacted bentonite/sand mixtures. *Soils and Foundations*. 2014;54(5): 1027-1038.
4. Yuan H, Agostini F, Skoczylas F, Talandier J. About adsorption effects on the poroelastic properties and gas permeability of CO_x claystone. *European Journal of Environmental and Civil Engineering*. 2017: 1-16.
5. CARIOU S. Couplage hydro-mécanique et transfert dans l'argilite de Meuse/Haute-Marne: approches expérimentale et multi-échelle (*PhD thesis*). Paris, France: l'Université Paris Est; 2010.
6. Béatrice YVEN SS, YVES GERAUD. Mineralogy, texture and porosity of Callovo-Oxfordian argillite of the Meuse/Haute-Marne region (eastern Paris Basin). *Mémoires de la Société géologique de France*. 2007(178): 73-90.
7. Menaceur H. Comportement thermo-hydro-mécanique et microstructure de l'argilite du Callovo-Oxfordien (*PhD thesis*). Paris, France: l'Université Paris Est; 2014.
8. Zhang F. Comportement mécanique des argilites de MHM : influences de la saturation, de la composition minéralogique et de la température (*PhD thesis*). Lille, France: l'Université Lille 1; 2011.
9. Liu ZB, Xie SY, Shao JF, Conil N. Effects of deviatoric stress and structural anisotropy on compressive creep behavior of a clayey rock. *Appl Clay Sci*. 2015;114(0): 491-496.
10. Wang LL, Bornert M, Héripré E, Yang DS, Chanchole S. Irreversible deformation and damage in argillaceous rocks induced by wetting/drying. *J Appl Geophys*. 2014;107(0): 108-118.
11. Yang DS, Bornert M, Chanchole S, Gharbi H, Valli P, Gatzmiri B. Dependence of elastic properties of argillaceous rocks on moisture content investigated with optical full-field strain measurement techniques. *Int J Rock Mech Min Sci*. 2012;53(0): 45-55.
12. Montes HG, Duplay J, Martinez L, Escoffier S, Rousset D. Structural modifications of Callovo-Oxfordian argillite under hydration/dehydration conditions. *Appl Clay Sci*. 2004;25(3-4): 187-194.
13. Robinet J-C. Minéralogie, porosité et diffusion des solutés dans l'argilite du Callovo-Oxfordien de Bure (Meuse, Haute-Marne, France) de l'échelle centimétrique à micrométrique (*PhD thesis*). Poitiers, France: Université de Poitiers; 2008.
14. Wang L, Bornert M, Serge C, et al. Micro-scale experimental investigation of the anisotropic swelling of CO_x argillaceous rocks. *Clay Minerals*. 2013;48: 391-402.
15. Song Y, Davy CA, Troadec D, et al. Multi-scale pore structure of CO_x claystone: Towards the prediction of fluid transport. *Marine and Petroleum Geology*. 2015;65: 63-82.
16. Song Y, Davy CA, Bertier P, Troadec D. Understanding fluid transport through claystones from their 3D nanoscopic pore network. *Microporous and Mesoporous Materials*. 2016;228: 64-85.
17. Lenoir N, Viggiani C, Desrues J, Bésuelle P, Bornert M. MECHANICAL BEHAVIOUR AND RUPTURE IN CLAYEY ROCKS STUDIED BY X-RAY MICRO-TOMOGRAPHY

- AND 3D-DIGITAL IMAGE CORRELATION. *W(H)YDOC 08 : 3rd international workshop of young doctors in geomechanics*. France; 2008:pp. 35-38.
18. Cariou S, Dormieux L, Skoczylas F. An original constitutive law for Callovo-Oxfordian argillite, a two-scale double-porosity material. *Appl Clay Sci*. 2013;80–81: 18-30.
 19. Menaceur H, Delage P, Tang AM, Talandier J. The Status of Water in Swelling Shales: An Insight from the Water Retention Properties of the Callovo-Oxfordian Claystone. *Rock Mech Rock Engng*. 2016: 1-16.
 20. Wan M, Delage P, Tang AM, Talandier J. Water retention properties of the Callovo-Oxfordian claystone. *Int J Rock Mech Min Sci*. 2013;64(0): 96-104.
 21. Mohajerani M. Etude expérimentale du comportement thermo-hydro-mécanique de l'argillite du Callovo-Oxfordien. 2011.
 22. Collet F, Achchaq F, Djellab K, Marmoret L, Beji H. Water vapor properties of two hemp wools manufactured with different treatments. *Construction and Building Materials*. 2011;25(2): 1079-1085.
 23. Liu J. Etanchéité de l'interface argillite-bentonite re-saturée et soumise à une pression de gaz, dans le contexte du stockage profond de déchets radioactifs (*PhD thesis*). Lille, France: Ecole Centrale de Lille; 2013.
 24. M'Jahad S. Impact de la fissuration sur les propriétés de rétention d'eau et de transport de gaz des géomatériaux : Application au stockage géologique des déchets radioactifs. (*PhD thesis*). Lille, France: Ecole Centrale de Lille; 2012.
 25. Liu Z, Shao J. Moisture effects on damage and failure of Bure claystone under compression. *Géotechnique Letters*. 2016;6(3): 182-186.
 26. Cariou S, Skoczylas F, Dormieux L. Experimental measurements and water transfer models for the drying of argillite. *Int J Rock Mech Min Sci*. 2012;54(0): 56-69.
 27. Haxaire A, Djeran-Maigre I. Influence of dissolution on the mechanical behaviour of saturated deep argillaceous rocks. *Eng Geol*. 2009;109(3–4): 255-261.
 28. Hu D, Zhou H, Zhang F, Shao J, Zhang J. Modeling of inherent anisotropic behavior of partially saturated clayey rocks. *Computers and Geotechnics*. 2013;48(0): 29-40.
 29. Song Y. Rétention d'eau et microstructure fine de l'argillite de Bure (*PhD thesis*). Lille, France: Ecole Centrale de Lille; 2014.
 30. Wan M, Delage P, Tang AM, Talandier J. Water retention properties of the Callovo-Oxfordian claystone. *Int J Rock Mech Min Sci*. 2013;64: 96-104.
 31. J. BG, Daichao S, David A. Experimental study on volumetric behaviour of Maryland clay and the role of degree of saturation. *Canadian Geotechnical Journal*. 2014;51(12): 1449-1455.
 32. Mohajerani M, Delage P, Monfared M, Tang AM, Sulem J, Gatmiri B. Oedometric compression and swelling behaviour of the Callovo-Oxfordian argillite. *Int J Rock Mech Min Sci*. 2011;48(4): 606-615.
 33. Hu DW, Zhang F, Shao JF, Gatmiri B. Influences of Mineralogy and Water Content on the Mechanical Properties of Argillite. *Rock Mech Rock Engng*. 2014;47(1): 157-166.
 34. Carrier B, Wang L, Vandamme M, et al. ESEM study of the humidity-induced swelling of clay film. *Langmuir*. 2013;29(41): 12823-12833.
 35. Yang D, Chanchole S, Valli P, Chen L. Study of the Anisotropic Properties of Argillite Under Moisture and Mechanical Loads. *Rock Mech Rock Engng*. 2012;46(2): 247-257.

36. Guillon T, Giot R, Giraud A, Armand G. Response of Callovo-Oxfordian claystone during drying tests: unsaturated hydromechanical behavior. *Acta Geotech.* 2012;7(4): 313-332.
37. Pham QT. Effets de la désaturation et de la resaturation sur l'argillite dans les ouvrages souterrains. 2006:1 vol. (190 p.).
38. Liu J-F, Skoczylas F, Talandier J. Gas permeability of a compacted bentonite–sand mixture: coupled effects of water content, dry density, and confining pressure. *Canadian Geotechnical Journal.* 2015;52(8): 1159-1167.
39. De La Vaissière R, Armand G, Talandier J. Gas and water flow in an excavation-induced fracture network around an underground drift: A case study for a radioactive waste repository in clay rock. *Journal of Hydrology.* 2015;521(0): 141-156.
40. Lion M, Skoczylas F, Dubois T. Evolution de la perméabilité d'une roche et d'un mortier sous températures élevées. *Revue Européenne de Génie Civil.* 2006;10(1): 65-82.
41. Klinkenberg LJ. The Permeability Of Porous Media To Liquids And Gases. American Petroleum Institute.
42. Wang G, Ren T, Wang K, Zhou A. Improved apparent permeability models of gas flow in coal with Klinkenberg effect. *Fuel.* 2014;128: 53-61.
43. Chen W, Liu J, Brue F, et al. Water retention and gas relative permeability of two industrial concretes. *Cem Concr Res.* 2012;42(7): 1001-1013.
44. Firouzi M, Alnoaimi K, Kovscek A, Wilcox J. Klinkenberg effect on predicting and measuring helium permeability in gas shales. *International Journal of Coal Geology.* 2014;123: 62-68.
45. Pei Y. Effets du chauffage sur les matériaux cimentaires - impact du « self-healing » sur les propriétés de transfert (*PhD thesis*). Lille, France: Ecole Centrale de Lille; 2016.
46. Zhang C, Rothfuchs T. Experimental study of the hydro-mechanical behaviour of the Callovo-Oxfordian argillite. *Appl Clay Sci.* 2004;26(1–4): 325-336.
47. Davy CA, Skoczylas F, Barnichon JD, Lebon P. Permeability of macro-cracked argillite under confinement: Gas and water testing. *Phys Chem Earth, Parts A/B/C.* 2007;32(8–14): 667-680.
48. Skoczylas F. Rapport d'avancement pour l'étude AS2 du GL Gaz. Mesure des perméabilités intrinsèques et relatives au gaz. Effet de la pression d'injection et de la nature du gaz. Courbes caractéristiques pression capillaire – saturation. 2010.
49. Homand F, Giraud A, Escoffier S, Koriche A, Hoxha D. Permeability determination of a deep argillite in saturated and partially saturated conditions. *Int J Heat Mass Tran.* 2004;47(14–16): 3517-3531.
50. Coussy O. Poromechanics. *Poromechanics.* John Wiley & Sons, Ltd; 2004.
51. Terzaghi K. *Theoretical soil mechanics / by Karl Terzaghi.* London: Chapman; 1944.
52. Biot MA. Theory of Elasticity and Consolidation for a Porous Anisotropic Solid. *J Appl Phys.* 1955;26(2): 182-185.
53. Lion M, Skoczylas F, Ledésert B. Determination of the main hydraulic and poro-elastic properties of a limestone from Bourgogne, France. *Int J Rock Mech Min Sci.* 2004;41(6): 915-925.
54. Lion M, Skoczylas F, Ledésert B. Effects of heating on the hydraulic and poroelastic properties of bourgogne limestone. *Int J Rock Mech Min Sci.* 2005;42(4): 508-520.

55. Hu DW, Zhou H, Zhang F, Shao JF. Evolution of poroelastic properties and permeability in damaged sandstone. *Int J Rock Mech Min Sci.* 2010;47(6): 962-973.
56. Dassanayake ABN, Fujii Y, Fukuda D, Kodama J-i. A new approach to evaluate effective stress coefficient for strength in Kimachi sandstone. *J Pet Sci Technol.* 2015;131(0): 70-79.
57. Chen X-T, Davy CA, Skoczylas F, Shao JF. Effect of heat-treatment and hydrostatic loading upon the poro-elastic properties of a mortar. *Cem Concr Res.* 2009;39(3): 195-205.
58. Pei Y, Agostini F, Skoczylas F. The effects of high temperature heating on the gas permeability and porosity of a cementitious material. *Cem Concr Res.* 2017;95: 141-151.
59. Zhang Y. Comportement hydrique et poro-mécanique des bétons à hautes performances Andra : influence de la microstructure. 2014.
60. Bemmer E, Longuemare P, Vincké O. Poroelastic parameters of Meuse/Haute Marne argillites: effect of loading and saturation states. *Appl Clay Sci.* 2004;26(1-4): 359-366.
61. Belmokhtar M, Delage P, Ghabezloo S, Tang A-M, Menaceur H, Conil N. Poroelasticity of the Callovo-Oxfordian Claystone. *Rock Mech Rock Engng.* 2016: 1-19.
62. Cariou S, Duan Z, Davy C, Skoczylas F, Dormieux L. Poromechanics of partially saturated CO_x argillite. *Appl Clay Sci.* 2012;56(0): 36-47.
63. Bignonnet F. Caractérisation expérimentale et modélisation micro-mécanique de la perméabilité et la résistance de roches argileuses (*PhD thesis*). Paris, France: l'Université Paris Est; 2014.
64. Fitzgerald JE, Pan Z, Sudibandriyo M, Robinson JRL, Gasem KAM, Reeves S. Adsorption of methane, nitrogen, carbon dioxide and their mixtures on wet Tiffany coal. *Fuel.* 2005;84(18): 2351-2363.
65. Plaza MG, Durán I, Querejeta N, Rubiera F, Pevida C. Experimental and Simulation Study of Adsorption in Postcombustion Conditions Using a Microporous Biochar. 1. CO₂ and N₂ Adsorption. *Industrial & Engineering Chemistry Research.* 2016;55(11): 3097-3112.
66. Wang L, Yu Q. The effect of moisture on the methane adsorption capacity of shales: A study case in the eastern Qaidam Basin in China. *Journal of Hydrology.* 2016;542: 487-505.
67. Brochard L. Poromechanics and adsorption : application to coal swelling during carbon geological storage (*PhD thesis*). Paris, France: l'Université Paris Est; 2011.
68. Busch A, Bertier P, Gensterblum Y, et al. On sorption and swelling of CO₂ in clays. *Geomechanics and Geophysics for Geo-Energy and Geo-Resources.* 2016;2(2): 111-130.
69. Chen T, Feng X-T, Pan Z. Experimental study of swelling of organic rich shale in methane. *International Journal of Coal Geology.* 2015;150-151: 64-73.
70. Lu Y, Ao X, Tang J, Jia Y, Zhang X, Chen Y. Swelling of shale in supercritical carbon dioxide. *Journal of Natural Gas Science and Engineering.* 2016;30: 268-275.
71. Song W, Yao J, Li Y, et al. Apparent gas permeability in an organic-rich shale reservoir. *Fuel.* 2016;181: 973-984.
72. Li D, Zhang L, Wang JY, Lu D, Du J. Effect of adsorption and permeability correction on transient pressures in organic rich gas reservoirs: Vertical and hydraulically fractured horizontal wells. *Journal of Natural Gas Science and Engineering.* 2016;31: 214-225.

73. Wang J, Luo H, Liu H, Lin J, Li L, Lin W. Influences of adsorption/desorption of shale gas on the apparent properties of matrix pores. *Petroleum Exploration and Development*. 2016;43(1): 158-165.
74. Wentinck HM, Busch A. Modelling of CO₂ diffusion and related poro-elastic effects in a smectite-rich cap rock above a reservoir used for CO₂ storage. *Geological Society, London, Special Publications*. 2017;454.
75. Menaceur H, Delage P, Tang A-M, Conil N. The thermo-mechanical behaviour of the Callovo-Oxfordian claystone. *Int J Rock Mech Min Sci*. 2015;78: 290-303.
76. Jia Y, Bian HB, Duveau G, Su K, Shao JF. Numerical modelling of in situ behaviour of the Callovo–Oxfordian argillite subjected to the thermal loading. *Eng Geol*. 2009;109(3–4): 262-272.
77. Armand G, Djizanne H, Zghondi J, de La Vaissière R, Talandier J, Conil N. Inputs from in situ experiments to the understanding of the unsaturated behaviour of Callovo-Oxfordian claystone. *E3S Web Conf*. 2016;9: 03004.
78. Zhang C-L, Conil N, Armand G. Thermal effects on clay rocks for deep disposal of high-level radioactive waste. *Journal of Rock Mechanics and Geotechnical Engineering*. 2017;9(3): 463-478.
79. Mohajerani M, Delage P, Sulem J, Monfared M, Tang AM, Gatmiri B. A laboratory investigation of thermally induced pore pressures in the Callovo-Oxfordian claystone. *Int J Rock Mech Min Sci*. 2012;52(0): 112-121.
80. Cheng AHD. Material coefficients of anisotropic poroelasticity. *Int J Rock Mech Min Sci*. 1997;34(2): 199-205.
81. Davy CA, Skoczylas F, Lebon P, Dubois T. Gas migration properties through a bentonite/argillite interface. *Appl Clay Sci*. 2009;42(3–4): 639-648.
82. Boulin PF, Angulo-Jaramillo R, Daian J-F, Talandier J, Berne P. Experiments to estimate gas intrusion in Callovo-oxfordian argillites. *Phys Chem Earth, Parts A/B/C*. 2008b;33, Supplement 1: S225-S230.
83. Burlion N, Skoczylas F, Dubois T. Induced anisotropic permeability due to drying of concrete. *Cem Concr Res*. 2003;33(5): 679-687.
84. Zimmerman RW. *Compressibility of sandstones*1991.
85. Mazumder S, Wolf KH. Differential swelling and permeability change of coal in response to CO₂ injection for ECBM. *International Journal of Coal Geology*. 2008;74(2): 123-138.
86. Brochard L, Vandamme M, Pellenq RJM. Poromechanics of microporous media. *J Mech Phys Solids*. 2012;60(4): 606-622.
87. Vandamme M, Brochard L, Lecampion B, Coussy O. Adsorption and strain: The CO₂-induced swelling of coal. *J Mech Phys Solids*. 2010;58(10): 1489-1505.
88. Yuan H, Agostini F, Duan Z, Skoczylas F, Talandier J. Measurement of Biot's coefficient for CO_x argillite using gas pressure technique. *Int J Rock Mech Min Sci*. 2017;92: 72-80.
89. Loosveldt H, Lafhaj Z, Skoczylas F. Experimental study of gas and liquid permeability of a mortar. *Cem Concr Res*. 2002;32(9): 1357-1363.
90. Bignonnet F, Duan Z, Egermann P, Jeannin L, Skoczylas F. Experimental Measurements and Multi-Scale Modeling of the Relative Gas Permeability of a Caprock. *Oil Gas Sci Technol – Rev IFP Energies nouvelles*. 2016;71(4): 55.

91. Liu S, Harpalani S. A new theoretical approach to model sorption-induced coal shrinkage or swelling. *AAPG Bulletin*. 2013;97(7): 1033.
92. Van Oort E. On the physical and chemical stability of shales. *J Pet Sci Technol*. 2003;38(3–4): 213-235.
93. Shi J-Q, Durucan S, Shimada S. How gas adsorption and swelling affects permeability of coal: A new modelling approach for analysing laboratory test data. *International Journal of Coal Geology*. 2014;128–129: 134-142.
94. Malbrunot P, Vidal D, Vermesse J, Chahine R, Bose TK. Adsorption measurements of argon, neon, krypton, nitrogen, and methane on activated carbon up to 650 MPa. *Langmuir*. 1992;8(2): 577-580.
95. Espinoza DN, Vandamme M, Dangla P, Pereira JM, Vidal-Gilbert S. A transverse isotropic model for microporous solids: Application to coal matrix adsorption and swelling. *J Geophys Res: Solid Earth*. 2013;118(12): 6113-6123.
96. Wang JG, Liu J, Kabir A. Combined effects of directional compaction, non-Darcy flow and anisotropic swelling on coal seam gas extraction. *International Journal of Coal Geology*. 2013;109–110(0): 1-14.
97. Liu S, Wang Y, Harpalani S. Anisotropy characteristics of coal shrinkage/swelling and its impact on coal permeability evolution with CO₂ injection. *Greenhouse Gases: Science and Technology*. 2016;6(5): 615-632.
98. Heller R, Zoback M. Adsorption of methane and carbon dioxide on gas shale and pure mineral samples. *Journal of Unconventional Oil and Gas Resources*. 2014;8: 14-24.
99. Li CJ, Feng JL. Adsorption-induced permeability change of porous material: a micromechanical model and its applications. *Archive of Applied Mechanics*. 2016;86(3): 465-481.
100. Skoczylas F, Burlion N, Yurtdas I. About drying effects and poro-mechanical behaviour of mortars. *Cement and Concrete Composites*. 2007;29(5): 383-390.
101. Chen X-t, Caratini G, Davy CA, Troadec D, Skoczylas F. Coupled transport and poro-mechanical properties of a heat-treated mortar under confinement. *Cem Concr Res*. 2013;49(0): 10-20.
102. Sun J, Dong X, Wang J, et al. Measurement of total porosity for gas shales by gas injection porosimetry (GIP) method. *Fuel*. 2016;186: 694-707.
103. Wang M, Yu Q. Pore structure characterization of Carboniferous shales from the eastern Qaidam Basin, China: Combining helium expansion with low-pressure adsorption and mercury intrusion. *J Pet Sci Technol*. 2017;152: 91-103.
104. Oliveira GLPd, Ceia MAR, Missagia RM, et al. Pore volume compressibilities of sandstones and carbonates from Helium porosimetry measurements. *J Pet Sci Technol*. 2016;137: 185-201.
105. Liu S, Harpalani S. Determination of the Effective Stress Law for Deformation in Coalbed Methane Reservoirs. *Rock Mech Rock Engng*. 2014;47(5): 1809-1820.
106. Li X, Feng Z, Han G, et al. Breakdown pressure and fracture surface morphology of hydraulic fracturing in shale with H₂O, CO₂ and N₂. *Geomechanics and Geophysics for Geo-Energy and Geo-Resources*. 2016;2(2): 63-76.
107. Wang Y, Liu S. Estimation of Pressure-Dependent Diffusive Permeability of Coal Using Methane Diffusion Coefficient: Laboratory Measurements and Modeling. *Energy & Fuels*. 2016.

108. Singh H, Javadpour F. Langmuir slip-Langmuir sorption permeability model of shale. *Fuel*. 2016;164: 28-37.
109. Zang J, Wang K, Zhao Y. Evaluation of gas sorption-induced internal swelling in coal. *Fuel*. 2015;143: 165-172.
110. Wu K, Chen Z, Li X, Guo C, Wei M. A model for multiple transport mechanisms through nanopores of shale gas reservoirs with real gas effect–adsorption-mechanic coupling. *Int J Heat Mass Tran*. 2016;93: 408-426.
111. Song Y, Davy CA, Bertier P, Skoczylas F, Talandier J. On the porosity of CO_x claystone by gas injection. *Microporous and Mesoporous Materials*. 2017;239: 272-286.
112. Liu JF, Davy CA, Talandier J, Skoczylas F. Effect of gas pressure on the sealing efficiency of compacted bentonite–sand plugs. *Journal of Contaminant Hydrology*. 2014;170: 10-27.
113. Wileveau Y, Cornet FH, Desroches J, Blumling P. Complete in situ stress determination in an argillite sedimentary formation. *Phys Chem Earth, Parts A/B/C*. 2007;32(8–14): 866-878.
114. Al-Wardy W, Zimmerman RW. Effective stress law for the permeability of clay-rich sandstones. *J Geophys Res: Solid Earth*. 2004;109(B4): 1-10.
115. Ghabezloo S, Sulem J, Guédon S, Martineau F. Effective stress law for the permeability of a limestone. *Int J Rock Mech Min Sci*. 2009;46(2): 297-306.
116. Moghadam JN, Mondol NH, Aagaard P, Hellevang H. Effective stress law for the permeability of clay-bearing sandstones by the Modified Clay Shell model. *Greenhouse Gases: Science and Technology*. 2016: 1-22.
117. Monfared M, Sulem J, Delage P, Mohajerani M. A Laboratory Investigation on Thermal Properties of the Opalinus Claystone. *Rock Mech Rock Engng*. 2011;44(6): 735-747.

Résumé

Caractérisation expérimentale des propriétés poromécanique et de transfert de l'argilite du COx

L'argilite du COx a été choisie comme roche hôte pour le stockage des déchets radioactifs de haute activité et vie longue (HA-MAVL) en France. Ce matériau subira l'intrusion de gaz et d'eau sous, parfois, des conditions thermiques sévères. Par conséquent, afin d'évaluer la sécurité de cette barrière naturelle, il est très important de comprendre les propriétés poromécaniques et de transfert de ce matériau ainsi que l'effet de la température. Ce travail aborde les mesures au gaz du coefficient de Biot et montrent que celui-ci est presque égal à 1 en conditions humides. Il y a cependant sur le matériau sec un effet de l'adsorption du gaz et une déformation supplémentaire de gonflement du matériau. Cet effet a aussi un effet important sur les propriétés de transfert du gaz selon sa nature. Les propriétés de transfert et de saturation ont été examinées par des techniques gaz et comparées aux mesures usuelles. Les essais montrent aussi que la perméabilité à l'eau de site est d'environ 10^{-20} - 10^{-21} m² et beaucoup plus faible que celle au gaz. Enfin, on constate que le coefficient de Biot n'est pas affecté significativement par les effets thermiques mais que ces effets jouent sur la perméabilité relative au gaz de l'argilite.

Mots-clefs : Argilite du COx, coefficient de Biot, perméabilité au gaz, adsorption-gonflement, perméabilité à l'eau

Experimental characterization of poromechanical and transport properties of COx argillite

COx argillite has been selected as the host rock for the storage of high, medium-activity long-live (HA-MALL) radioactive waste in France. It will suffered the gas and water intrusion, sometimes suffered the severe thermal conditions during the sealing process. Therefore, in order to evaluate the safety of this natural barrier, it is very important to understand the poromechanical properties and transport properties of this material as well as the thermal effects. This work use gas to measure Biot's coefficient and shows that it is nearly equal to 1 in humid conditions. However, there is a gas adsorption and induced an additional swelling deformation on dry material, this effect also has a significant effect on the transport properties of the gas according to its nature. The transport and saturation properties were examined by gas technique and compared with the usually measurements. The tests also show that the permeability of in situ water is about 10^{-20} - 10^{-21} m² and much lower than gas. Lastly, it is found that Biot's coefficient is not significantly affected by the thermal effect, but the relative gas permeability of argillite is significantly affected by this effect.

Keywords: COx argillite, Biot's coefficient, gas permeability, adsorption-swelling, water permeability