

**Université Pierre et Marie Curie, École des Mines de Paris  
& École Nationale du Génie Rural des Eaux et des Forêts**

---

**Master 2 Sciences de l'Univers, Environnement, Ecologie  
Parcours Hydrologie-Hydrogéologie**

**Analyse des couplages osmotiques dans les argiles de Tournemire,  
expérimentation in-situ, en laboratoire et modélisation**

**Isabelle Girardin**

**Julio Gonçalves**

**Jean-Michel Matray**



**UMR Sisyphe**



**IRSN, Laboratoire d'Etude  
des Transferts dans les Sols  
et sous-sols**

**Septembre 2007**



## Résumé

Les argiles sont étudiées comme formations hôtes potentielles pour le stockage de déchets radioactifs en couches géologiques compactées profondes. Dans le cadre de l'expertise des travaux de l'ANDRA sur les argiles de Bures, l'IRSN a choisi les argilites toarciennes de Tournemire comme laboratoire souterrain. Des surpressions peuvent être observées dans ce type de formation et l'osmose est une des causes invoquées pour les expliquer. L'objectif de cette étude est donc de caractériser, par l'expérience et la modélisation, le comportement osmotique des argilites de Tournemire.

La modélisation et l'interprétation de l'expérience en laboratoire, effectuée sur carotte, a abouti à la détermination des paramètres suivants : perméabilité intrinsèque :  $2.10^{-20} \text{m}^2$  ; coefficient d'emmagasinement spécifique :  $7,5.10^{-4} \text{m}^{-1}$  ; coefficient de diffusion : 7 à  $11.10^{-12} \text{m}^2/\text{s}$  ; coefficient d'efficacité osmotique : 30 à 40 %. Nous avons cependant estimé que ces résultats étaient biaisés par la microfracturation due au carottage et au forage de l'échantillon qui conduit à estimer des valeurs de perméabilités et emmagasineurs d'un à deux ordres de grandeurs plus fortes sur échantillon qu'*in-situ*. De la même façon, une expérience *in-situ* aboutirait certainement à une efficacité osmotique supérieure à celle ici déterminée.

L'analyse des expériences menées en laboratoire nous a également permis de formuler quelques recommandations pour les expérimentations futures.

# Table des matières

Introduction.....	1
<b>1 Contexte.....</b>	<b>2</b>
1.1 Histoire géologique des grands causses .....	2
1.2 Le massif de Tournemire.....	3
1.2.1 Présentation du site .....	3
1.2.2 Stratigraphie .....	4
1.2.3 Hydrogéologie .....	5
1.2.4 Caractéristiques des argilites de Tournemire.....	6
1.3 Les argiles .....	7
<b>2 Problématique .....</b>	<b>9</b>
2.1 Surpressions .....	9
2.2 Une origine osmotique .....	10
2.2.1 Propriétés électrochimiques .....	10
2.2.2 Les argiles comme membrane semi-perméable .....	12
<b>3 Modèle .....</b>	<b>13</b>
<b>4 Expérience de laboratoire .....</b>	<b>15</b>
4.1 Principe .....	15
4.2 Matériels et méthodes .....	15
4.2.1 Préparation de l'échantillon .....	15
4.2.1.1 Chambre de test .....	15
4.2.1.2 Resaturation .....	16
4.2.2 Pulse-test.....	17
4.2.3 Osmose.....	18
4.3 Résultats .....	19
4.3.1 Pulse-test.....	19
4.3.2 Test osmotique .....	21
4.4 Modélisation et interprétation.....	21
4.4.1 Pulse test.....	21
4.4.2 Osmose.....	25
4.5 Perspectives.....	28
<b>5 Expérience <i>in-situ</i> .....</b>	<b>30</b>
5.1 Principe .....	30
5.2 Matériels et méthodes .....	30
5.2.1 Equipement et configuration du forage.....	30
5.2.2 Changement d'eau.....	31
5.2.3 Analyse des eaux.....	34
5.3 Résultats et discussion .....	35
5.4 Perspectives.....	36
<b>Conclusion.....</b>	<b>38</b>
<b>Références Bibliographiques .....</b>	<b>39</b>
<b>Remerciements.....</b>	<b>43</b>

## Liste des figures

Figure 1 : Carte géologique simplifiée de la région des causses (Dubois, 1985) .....	2
Figure 2 : Schématisation de l'évolution du bassin des grands causses (Patriarche 2001, d'après édition du guide Michelin).....	2
Figure 3 : Coupe géologique schématique de la section de Tournemire (fig. J.Cabrera).....	3
Figure 4 : Localisation des forages et galeries de la station de Tournemire (Matray et al., 2007) .....	4
Figure 5 : Colonne stratigraphique de la région de Tournemire (Barbreau et Boisson, 1993) .....	5
Figure 6 : Charges hydrauliques mesurées selon la cote NGF (m) (Patriarche 2001, d'après données IPSN).....	6
Figure 7 : Schéma d'un feuillet tétraédrique.....	8
Figure 8 : Schéma d'un feuillet octaédrique .....	8
Figure 9 : Profils des charges, mesurés et théoriques, à travers la formation argileuse .....	9
Figure 10 : Profil actuel des pressions dans PH4 .....	9
Figure 11 : Distribution du potentiel électrique d'après le modèle à double couche diffuse (Warren et Haack 2001).....	11
Figure 12 : Modèle triple couche (TLM) $\zeta$ : potentiel électrique du plan de cisaillement, $\varphi_0$ : potentiel électrique à la surface du minéral, $\varphi_B$ : potentiel électrique sur la couche de Stern (Leroy Revil 2004).....	11
Figure 13 : Schéma du montage expérimental, en bleu les capillaires et réservoirs, saturés.....	17
Figure 14 : Photo du dispositif .....	17
Figure 15 : Suivi pressions pendant le changement de fluide de la chambre.....	19
Figure 16 : Résultats du pulse en injection, surpression et retour à l'équilibre .....	20
Figure 17 : Résultats du pulse-test en dépression, retour à l'équilibre de la pression .....	20
Figure 18 : Suivi des pressions dans la chambre de test sur quatre mois.....	21
Figure 19 : Calage pulse injection sur solution analytique avec $k = 1.10^{-20} \text{ m}^2$ et $S_s = 7,5.10^{-4} \text{ m}^{-1}$ (en vert les données) .....	23
Figure 20 : Calage pulse dépression sur solution analytique avec $k = 6.10^{-20} \text{ m}^{-1}$ et $S_s = 3,8.10^{-5} \text{ m}^2$ (en vert les données) .....	23
Figure 21 : Pulse en injection, résultat de modélisation avec $k = 2e-20 \text{ m}^2$ et $S_s = 7,5.10^{-4} \text{ m}^{-1}$ .....	24
Figure 22 : Pulse en dépression, $k = 1,2e-19 \text{ m}^2$ et $S_s = 6,3e-5 \text{ m}^{-1}$ .....	24
Figure 23 : Résultats d'une modélisation avec les paramètres : $k$ et $S_s$ du pulse injection ( $k = 2.10^{-20} \text{ m}^2$ ; $S_s = 7,5.10^{-4} \text{ m}^{-1}$ ) et la compressibilité du pulse dépression ( $2,8.10^{-7} \text{ Pa}^{-1}$ ) ainsi que $D = 7.10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ ; efficacité osmotique = 0,28 .....	26
Figure 24 : Résultats d'une modélisation avec les paramètres : les $k$ et $S_s$ du pulse injection ( $k = 2.10^{-20} \text{ m}^2$ ; $S_s = 7,5.10^{-4} \text{ m}^{-1}$ ) et une compressibilité plus forte ( $6.10^{-7} \text{ Pa}^{-1}$ ) ainsi que $D = 8.10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ ; efficacité osmotique = 0,41 .....	27
Figure 25 : Résultats d'une modélisation avec les paramètres : $k$ et $S_s$ du pulse injection ( $k = 2.10^{-20} \text{ m}^2$ ; $S_s = 7,5.10^{-4} \text{ m}^{-1}$ ) et la compressibilité du pulse dépression ( $2,8.10^{-7} \text{ Pa}^{-1}$ ) ainsi que $D = 11.10^{-12}$ .....	27

$10^{-12}$ m <sup>2</sup> /s ; efficacité osmotique = 0,39 ; surface de contact eau de test/argile diminuée de moitié (35mm <sup>2</sup> ) .....	27
Figure 26 : Schéma du dispositif pour le changement de fluide de la chambre du forage PH3 .....	32
Figure 27 : Suivi des conductivités des eaux de sortie du forage, première circulation.....	33
Figure 28 : Suivi des conductivités des eaux de sortie du forage, deuxième circulation .....	33
Figure 29 : Suivi des conductivités des eaux de sortie du forage, troisième circulation .....	33
Figure 30 : Suivi des pressions dans la chambre pendant les circulations.....	34
Figure 31 : Résultat d'une modélisation <i>in-situ</i> avec $k = 1.10^{-21}$ m <sup>2</sup> , $S_s = 1.10^{-6}$ m <sup>-1</sup> , compressibilité du système = $1.10^{-8}$ Pa <sup>-1</sup> , efficacité osmotique = 0,6.....	36

## Liste des tableaux

Tableau 1 : Minéralogie des argilites toarcienne de Tournemire. (Bonin, 1998, Cabrera et al. 2001, Savoye et al. 2001, Patriarche, 2003, Altinier et al. 2006, Savoye, 2006).....	6
Tableau 2 : Paramètres physiques des argilites toarcienne de Tournemire. (Boisson <i>et al.</i> 1998 ; Bonin, 1998 ; Cabrera <i>et al.</i> , 2001 ; Patriarche, 2001 ; Savoye, 2005 ; Altinier, 2006).....	7
Tableau 3 : Composition eau porale (Beaucaire) .....	7
Tableau 4 : Composition de l'eau de saturation .....	16
Tableau 5 : Caractéristiques géométriques de la carotte .....	16
Tableau 6 : Composition de l'eau de test synthétique .....	18
Tableau 7 : Résultats des pulses .....	20
Tableau 8 : Résultats des pulses, comparaison modèle analytique et numérique .....	24
Tableau 9 : Résultats des modélisations de l'expérience osmotique.....	28
Tableau 10 : Composition de l'eau de l'aquifère supérieur.....	30
Tableau 11 : Composition de l'eau récupérée de la chambre de test, forage PH3 .....	35

## INTRODUCTION

En France les formations argileuses compactées profondes sont considérées comme une barrière géologique potentiellement efficace pour le stockage de déchets radioactifs du fait, notamment, de ses caractéristiques de faible perméabilité et de rétention de radionucléides. Ainsi, à Bure, le Callovo-Oxfordien fait actuellement l'objet d'investigations de la part de l'ANDRA et collaborateurs. L'Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN), à la demande des pouvoirs publics, est amené à expertiser les travaux de l'ANDRA, et conduit à ce titre un programme de recherches dans la station expérimentale de Tournemire.

Cette station est implantée dans un ancien tunnel ferroviaire du sud du Massif Central qui traverse une formation d'argilite toarcienne de 250 mètres d'épaisseur.

Des surpressions, i.e. supérieures à la pression hydrostatique, sont parfois constatées dans ce type de formations. À Bure, elles sont de l'ordre de 0,2 à 0,6 MPa. Les causes généralement invoquées pour expliquer ce phénomène sont la compaction, la migration d'hydrocarbures, la diagenèse ou des effets topographiques (Luo, 1994 ; Neuzil, 1995 ; de Marsily et al., 2002 ; Gonçalves et al., 2004). Il a également été montré que l'osmose chimique, en raison des propriétés des argiles qui leur permettent de se comporter comme des membranes semi-perméables, pouvait générer d'importantes surpressions (Fritz et Marine, 1981 ; Neuzil, 1986, 1995, 2000 ; Gonçalves et al., 2004).

L'objectif de ce stage est de vérifier un éventuel comportement osmotique des argilites de Tournemire et de déterminer les paramètres de couplage hydrodynamique osmotique des argilites de Tournemire (coefficients de perméabilité et d'efficacité osmotique...) à partir d'expériences *in-situ*, en laboratoire sur carotte et de leur modélisation.

La première partie de ce rapport présente le contexte de cette étude : géologie de la région de Tournemire et caractéristiques des argiles. La deuxième partie en explique la problématique, comment l'osmose peut être responsable de surpressions dans les formations argileuses ? Une partie est ensuite consacrée aux équations résolues par le modèle numérique développé par l'UMR Sisyphe et les parties suivantes décrivent les expériences qui ont été réalisées ainsi que les résultats des modélisations et les enseignements qui en ont été tirés.

# 1 CONTEXTE

La commune de Tournemire se situe dans le bassin des grands Causses , à 25 km au sud de Millau et 3 Km de Roquefort sur Soulzon (à la limite ouest du Causse du Larzac).

## 1.1 HISTOIRE GÉOLOGIQUE DES GRANDS CAUSSES

Le bassin des grands Causses est sous-bassin de la Téthys dont le remplissage commence par une sédimentation calcaire de mer chaude et peu profonde du Trias au Sinémurien. Au Domérien, le bassin s'approfondit et la sédimentation prend un caractère marneux puis argileux jusqu'au Toarcien. L'Aalénien marque le retour à une sédimentation carbonatée. Excepté un court intermède marin au Crétacé supérieur, l'évolution du bassin est subaérienne depuis fin Jurassique, Simon-Coinçon et Schmitt (1999) estiment que l'émergence a pu être générale à la fin du Portlandien.

L'évolution tectonique est marquée par l'orogénèse pyrénéenne qui a causé le rejeu en décrochement d'accidents nord-sud et des anciens accidents est-ouest. Le modelé actuel est hérité de l'érosion issue du soulèvement des Cévennes et du plissement pyrénéo-provençal, le bombement général du Massif Central combiné à une baisse du niveau marin a entraîné le creusement des vallées et l'installation des réseaux karstiques.

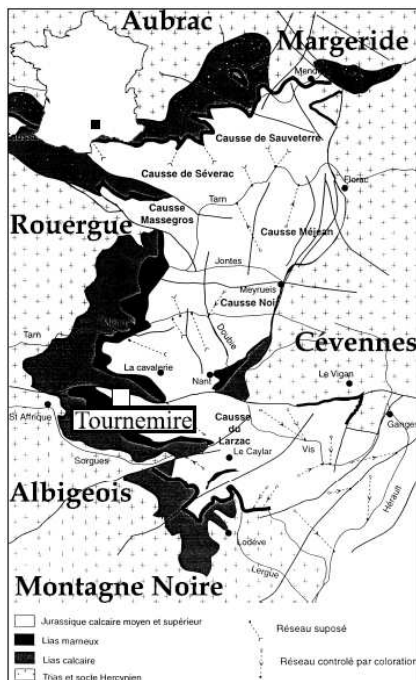


Figure 1 : Carte géologique simplifiée de la région des causses (Dubois, 1985)

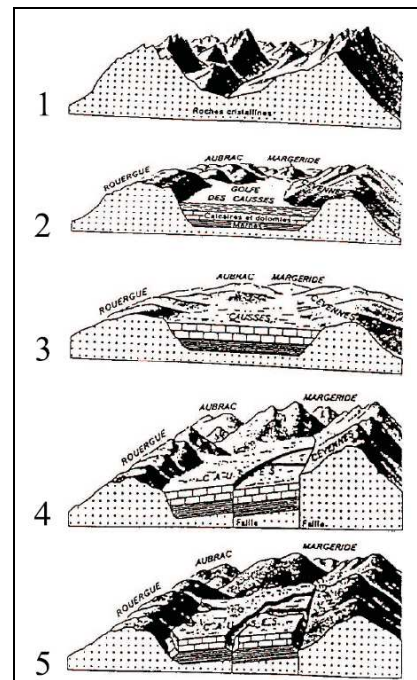


Figure 2 : Schématisation de l'évolution du bassin des grands causses (Patriarche 2001, d'après édition du guide Michelin)



## 1.2 LE MASSIF DE TOURNEMIRE

### 1.2.1 PRÉSENTATION DU SITE

La station expérimentale a été installée dans l'ancien tunnel ferroviaire centenaire de la Boutinenques reliant la vallée du Cernon, au nord, à celle du Souzlon, au sud. Il est long de 1885 m et traverse une formation argileuse toarcienne d'origine marine, épaisse d'environ 250 m encadrée par deux aquifères carbonatés et karstifiés (Cabrera et al., 2001 ; Patriarce et al., 2004) (figure 3)

La région de Tournemire est une structure monoclinale de pendage 4° vers le nord délimitée par deux accidents tectoniques majeurs : la faille de Saint-Jean d'Alcapies au sud et celle du Cernon au nord, faille ancienne (déjà existante à l'Hettangien d'après Simon-Coinçon et Schmitt (1999)) ayant joué de façon inverse lors de son dernier jeu. Cette dernière constitue l'élément morpho-structural le plus important de ce secteur, elle borde la partie nord du tunnel et le recoupe au point métrique 1550.

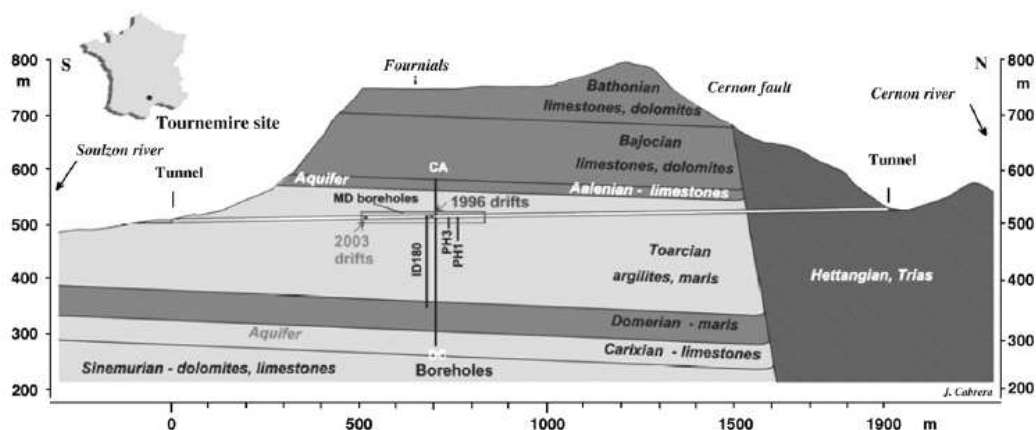


Figure 3 : Coupe géologique schématique de la section de Tournemire (fig. J.Cabrera)

De nombreux forages d'exploration et d'études ont été effectués dans le tunnel depuis 1990 et des galeries ont été creusées : galeries ouest et est, principale et secondaire (figure 4).

Ce site est particulièrement bien adapté à ce type de travail expérimental en raison des similitudes entre cette formation et celle de Bure, de son accès facilité par le tunnel et de la disposition subhorizontale des couches.

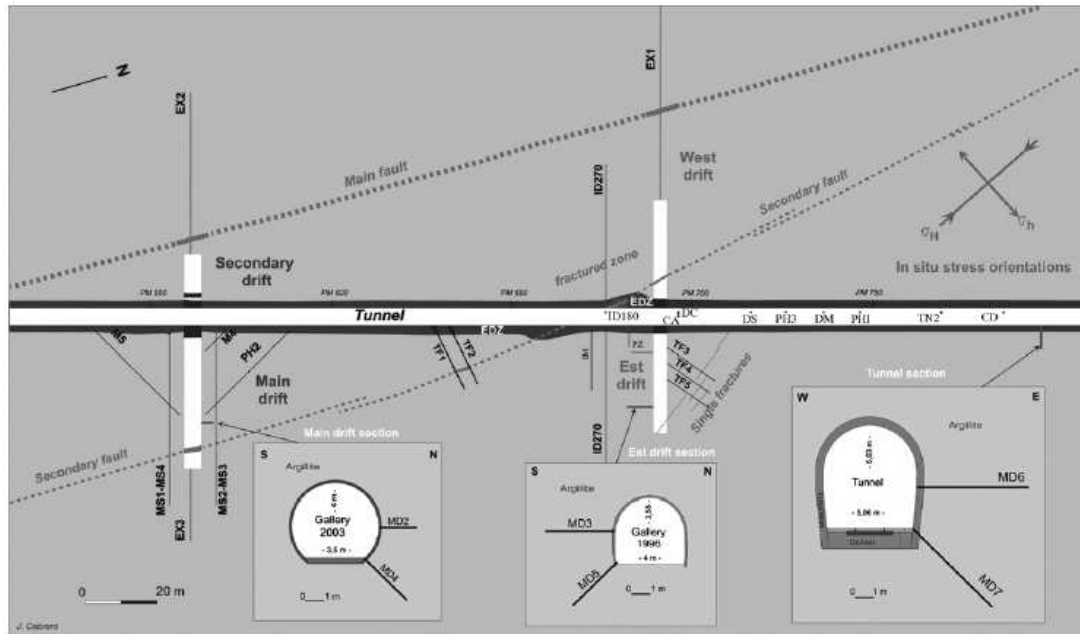


Figure 4 : Localisation des forages et galeries de la station de Tournemire (Matray et al., 2007)

### 1.2.2 STRATIGRAPHIE

Les séries stratigraphiques de Tournemire, du lit de la rivière du Souzlon au sommet du Causse du Larzac, s'étendent sur 400 m du Lias au Dogger sans lacune notable (figure 5). Les séries qui nous intéressent ici plus particulièrement sont celles du Toarcien. On distingue ainsi le Toarcien inférieur constitué de 25m de « schistes cartons » riches en matière organique (5%), les 20m de marnes du Toarcien moyen et les 160m d'argilites du Toarcien supérieur dans lequel se situe le tunnel.

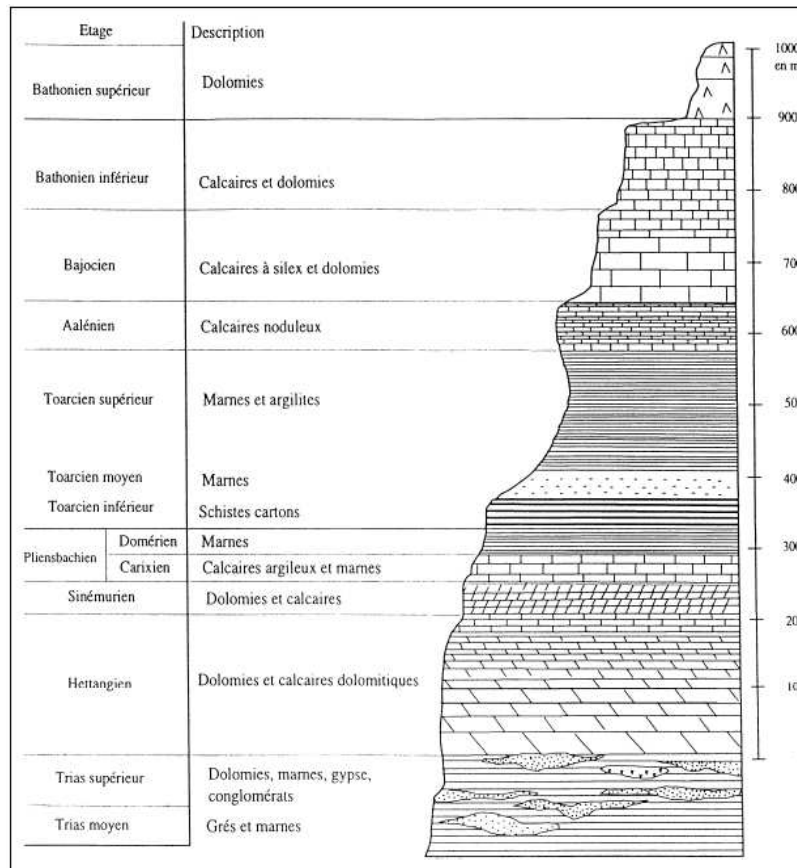


Figure 5 : Colonne stratigraphique de la région de Tournemire (Barbreau et Boisson, 1993)

### 1.2.3 HYDROGÉOLOGIE

Les argilites du Toarcien sont encadrées par deux aquifères karstifiés. L'aquifère inférieur, de 300m d'épaisseur, est un aquifère régional situé dans les séries hettangiennes à carixiennes, il est alimenté au sud par les tables calcaires de l'avant-causse et les écoulements sont orientés SE-NW selon l'inclinaison des blocs. L'aquifère supérieur, de 250m d'épaisseur, est d'étendue locale sur Tournemire. Il se situe dans les couches du Jurassique moyen, est alimenté par les précipitations sur le Causse du Larzac et les écoulements se font vers le NNE. La communication entre ces aquifères est rendue possible par un réseau de fractures et notamment la faille très transmissive du Cernon.

Les mesures de charges hydrauliques présentées en figure 6 suggère un écoulement de l'aquifère supérieur vers l'aquifère inférieur. Cependant, en raison de la très faible perméabilité des argilites, la convection n'est pas ici le mode de transport privilégié des solutés qui migreraient plutôt par diffusion (Patriarche, 2001).

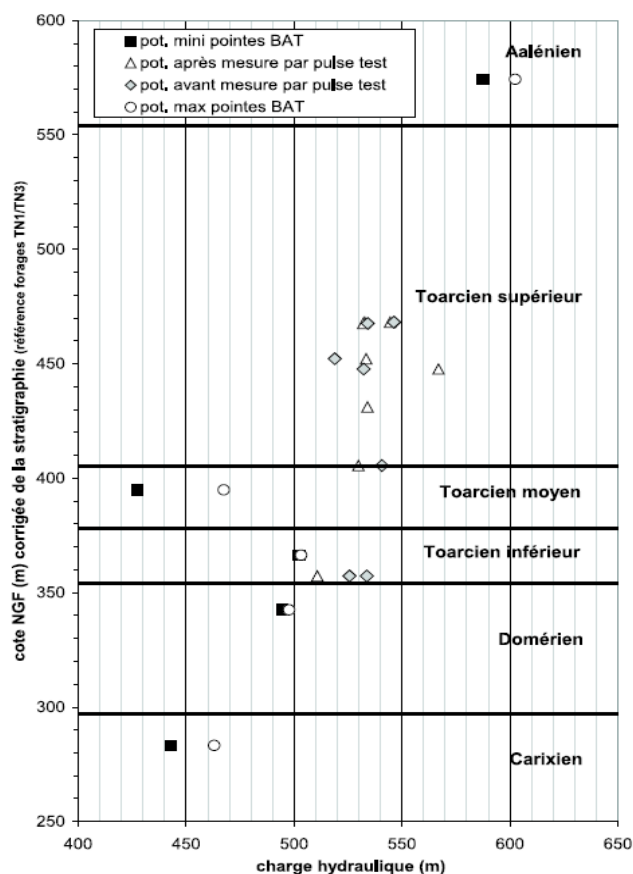


Figure 6 : Charges hydrauliques mesurées selon la cote NGF (m) (Patriarche 2001, d'après données IPSN)

#### 1.2.4 CARACTÉRISTIQUES DES ARGILITES DE TOURNEMIRE

Les argilites sont composées de 20 à 50 % de minéraux argileux ainsi que de quartz, de carbonates et de pyrite (voir tableau 1).

Minéral		Proportion en poids (%)
Minéraux argileux (<2µm) Total : 20 à 50 %	Kaolinite	10 à 25
	Illite	5 à 15
	Illite/smectite	5 à 10
	Chlorite	1 à 5
Autres minéraux (>2µm)	Carbonates (calcite, dolomie, sidérite)	10 à 40
	Quartz	10 à 30
	Pyrite	2 à 7

Tableau 1 : Minéralogie des argilites toarcienne de Tournemire. (Bonin, 1998, Cabrera et al. 2001, Savoye et al. 2001, Patriarche, 2003, Altinier et al. 2006, Savoye, 2006)

Masse volumique	2500-2600 kg/m <sup>3</sup>
Teneur en eau pondérale	9 à 12 %
Porosité	7 à 12 %
Taille des pores	15 à 22 Å
Surface spécifique	~24 m <sup>2</sup> /g
Capacité d'Échange Cationique	10 meq/100g
De horizontal	1e-11 m <sup>2</sup> /s
De vertical	7e-12 m <sup>2</sup> /s
Perméabilité (K)	10e-14 10e-15 m/s
Emmagasinement spécifique (Ss)	10e-6

Tableau 2 : Paramètres physiques des argilites toarcienne de Tournemire. (Boisson *et al.* 1998 ; Bonin, 1998 ; Cabrera *et al.*, 2001 ; Patriarche, 2001 ; Savoye, 2005 ; Altinier, 2006)

Dans le tableau 2 sont résumées les caractéristiques physiques moyennes des argilites de Tournemire qui ont fait, et font encore, l'objet de diverses études expérimentales.

Cette dernière est connue grâce à certains forages dans lesquels de l'eau provenant de fractures a pu être récupérée. Datée au carbone 14 à plus de 10000ans, cette eau est supposée être à l'équilibre (tableau 3).

Elément	Concentration mesurée sur TF5 (mmol/L)	Concentration calculée PHREEQC/Jchess (mmol/L)
Na <sup>+</sup>	10-12	10
K <sup>+</sup>	0,15	0,22
Ca <sup>2+</sup>	0,2-0,4	0,38
Mg <sup>2+</sup>	0,25	0,38
Cl <sup>-</sup>	5-8	5,7
HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	6	6

Tableau 3 : Composition eau porale (Beaucaire)

### 1.3 LES ARGILES

Les minéraux argileux sont de taille inférieure à 2µm et appartiennent au groupe des phyllosilicates. On parle d'argilite lorsqu'une roche contient 30% ou plus de minéraux argileux.

Les minéraux argileux sont constitués de feuillets tétraédriques,  $n((Si_2O_5)^{2-})$  (voir figure 7), et octaédriques (voir figure 8) reliés par des liaisons ioniques. Les feuillets octaédriques peuvent être dioctaédrique si l'ion central est trivalent,  $n(Al_2(OH)_6)$ , ou trioctaédrique s'il est divalent,  $n(Mg_3(OH)_6)$ .

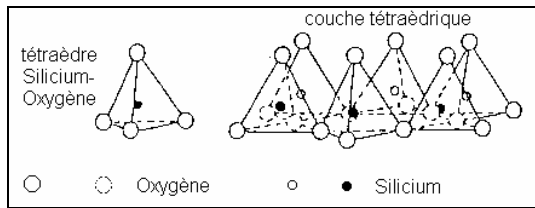


Figure 7 : Schéma d'un feuillet tétraédrique

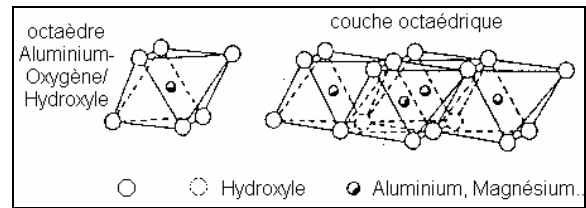


Figure 8 : Schéma d'un feuillet octaédrique

Les feuillets sont organisés en unités structurales et deux groupes d'argile sont ainsi distingués :

- Les 1 :1 où l'unité structurale, épaisse d'environ 7Å, est constituée d'un feuillet tétraédrique lié à un feuillet octaédrique. Les kaolins et serpentines appartiennent notamment à ce premier groupe.
- Les 2 :1 où deux feuillets tétraédriques encadrent un feuillet octaédrique, la couche ainsi formée étant épaisse d'environ 10Å. Ce sont les groupes des smectite-vermiculite et talc-pyrophyllite ainsi que les micas, illites et chlorites.

Dans la maille cristalline, il arrive qu'un atome soit remplacé par un autre, de rayon ionique similaire. On parle alors de *substitution isomorphique*. Ainsi,  $Al^{3+}$  peut se substituer à  $Si^{4+}$  dans les feuillets tétraédriques, et  $Mg^{2+}$  à  $Al^{3+}$  dans les feuillets dioctaédriques.

Cette substitution d'un atome par un autre de moindre valence, ainsi que l'ionisation des groupements silanols  $SiOH$  en  $SiO^-$ , chargent négativement la surface du minéral qui adsorbe alors des cations afin de maintenir l'électroneutralité. La proportion d'atomes substitués et le type de cations adsorbés varient selon le minéral. Par exemple, les illites adsorbent essentiellement des  $K^+$  qui permettent une bonne cohésion des couches alors qu'entre les couches de montmorillonite (smectite), les cations sont généralement autres et les liaisons plus faibles. Ainsi, l'eau peut s'infiltrer dans l'espace interfoliaire et provoquer le gonflement du matériau avec l'humidité.

Les argiles sont également caractérisés par des pores très étroits, de l'ordre de l'angström et des surfaces spécifiques (surface de minéral par unité de masse de solide) pouvant être très élevées du fait de leur configuration en plaquettes et de leur petite taille.

La capacité d'échange cationique (CEC) peut être définie comme le nombre de sites de surface disponibles pour l'échange de cations, elle s'exprime en meq/100g

## 2 PROBLÉMATIQUE

### 2.1 SURPRESSIONS

Dans les argiles de Bure, des surpressions de l'ordre de 0,2 à 0,6 MPa ont été constatées. Elles sont suspectées à Tournemire en regard du forage ID180 (voir localisation figure 3) qui a recoupé des fractures transmissives et dont les pressions mesurées sont supérieures à celles théoriquement attendues par le gradient de charges entre les deux aquifères (figure 9). De plus, le profil des pressions du forage profond PH4 montre d'ores et déjà des surpressions dans les chambres basses (figure 10)

Ce type de surpressions peut être attribué à des origines diverses : compaction, migration d'hydrocarbures, diagenèse ou effets topographiques (Luo, 1994 ; Neuzil, 1995 ; de Marsily et al., 2002 ; Gonçalves et al., 2004). Il a également été montré que l'osmose chimique, en raison des propriétés des argiles qui leur permettent de se comporter comme des membranes semi-perméables, pouvait générer d'importantes surpressions (Fritz et Marine, 1981 ; Neuzil, 1986, 1995, 2000 ; Gonçalves et al., 2004)

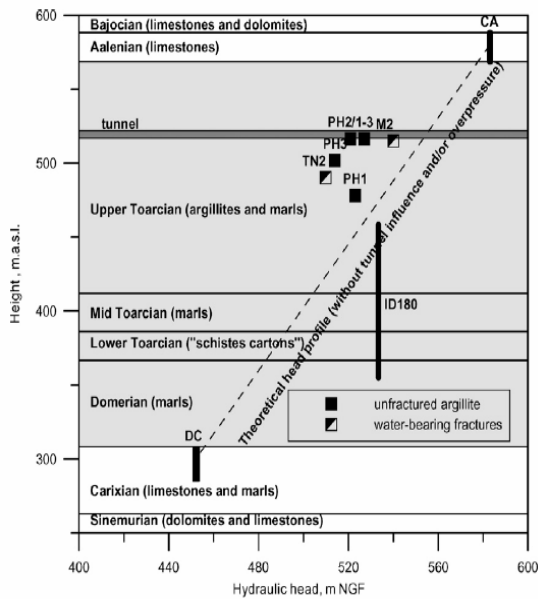


Figure 9 : Profils des charges, mesurés et théoriques, à travers la formation argileuse

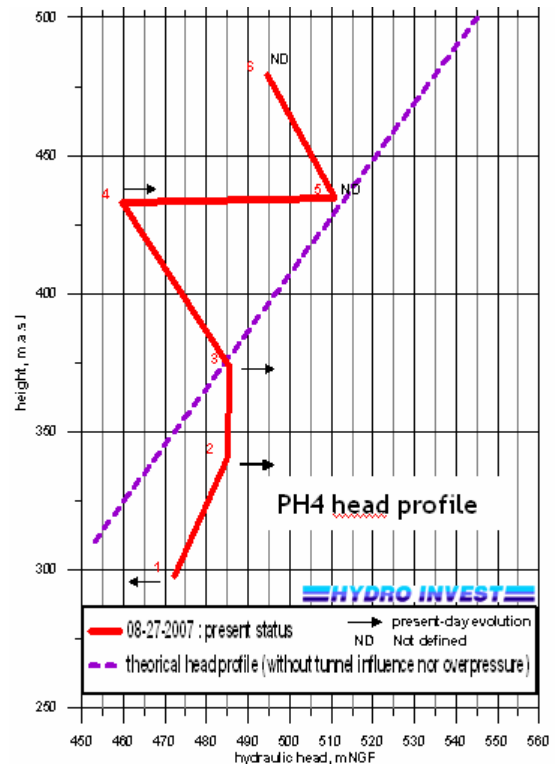


Figure 10 : Profil actuel des pressions dans PH4

## 2.2 UNE ORIGINE OSMOTIQUE

L'osmose est un mouvement d'eau à travers une membrane semi-perméable sous l'effet d'un gradient de potentiel chimique. Lorsque la membrane est idéale, elle autorise uniquement le passage de l'eau.

Reconnue en biologie depuis longtemps, cette théorie a été étendue aux milieux argileux quand il a été montré qu'ils pouvaient se comporter comme des membranes semi-perméables.

### 2.2.1 PROPRIÉTÉS ELECTROCHIMIQUES

La compréhension de la capacité des argiles à se comporter comme des membranes semi-perméables passe dans un premier temps par une étude de leurs propriétés électrochimiques et de la façon dont se distribuent les ions dans l'espace poral.

La théorie de Gouy-Chapman décrit la répartition des ions dans l'espace poral sous la forme d'une *double couche diffuse* où les ions sont considérés comme des charges ponctuelles et libres.

Près de la surface, les forces électrostatiques induites par la charge négative de la surface des minéraux ont tendance à attirer les cations et repousser les anions tandis que le phénomène de diffusion tend à rétablir l'équilibre des concentrations. Il se développe alors une couche diffuse (figure 11) dans laquelle la concentration  $n_{\pm}$  des ions obéit à une distribution de Boltzmann :

$$n_{\pm} = n_e \exp\left(\frac{\mp ze\varphi}{kT}\right) \quad (1)$$

où  $n_e$  est la concentration dans l'eau libre,  $z$  la valence de l'ion,  $e$  la charge élémentaire,  $k$  la constante de Boltzmann,  $T$  la température et  $\varphi$  le potentiel électrique à la distance  $x$  de la surface minérale.  $\varphi$  décroît de façon exponentielle avec  $x$  et pour des faibles potentiels ( $ze\varphi/2kT \ll 1$ ), on peut écrire l'approximation de Debye-Hückel :  $\varphi = \varphi_0 \exp(-\kappa x)$ . Avec  $\kappa = 2e^2 n_e z^2 / \epsilon kT$ ,  $\epsilon$  étant la constante diélectrique du milieu et  $1/\kappa$  la distance de Debye, représentative de l'épaisseur de la couche diffuse.

L'épaisseur de cette couche dépend donc de la valence des ions présents (elle est plus épaisse si les cations adsorbés sont monovalents), de la concentration de l'eau porale (plus la solution est concentrée, plus il y a de cations disponibles près de la surface et plus la couche diffuse est fine) et de la température (diffusion thermique). Elle peut varier du nanomètre à quelques dizaines de nm.





### 2.2.2 LES ARGILES COMME MEMBRANE SEMI-PERMÉABLE

Nous avons vu que du fait de la charge négative portée par les surfaces minérales, les anions ont tendance à en être repoussés. Dans des argiles compactées, du fait de l'espace poral très étroit, il peut y avoir des recouvrements entre les doubles couches de deux surfaces qui se font face. Ainsi, les anions peuvent être partiellement exclus de l'espace poral. C'est l'exclusion anionique ou exclusion de Donnan (Edwards et Quirk, 1962 ; Bolt et de Haan, 1979).

Afin de maintenir l'électroneutralité de la solution, les cations tendent à rester avec les anions et leur circulation s'en trouve également contrainte. En revanche, les molécules neutres telles que l'eau peuvent se déplacer plus librement et c'est ainsi que, en restreignant le passage des ions mais pas celui de l'eau dans l'espace poral, les argiles se comportent comme des membranes semi-perméables (Fritz, 1986).

La différence de pression osmotique qui peut être ainsi générée entre deux réservoirs de concentrations différentes séparés par une membrane argileuse idéale est (Fritz&Marine) :

$$\Delta\pi = -\frac{RT}{V_w} \ln\left(\frac{a_{w1}}{a_{w2}}\right) \quad (2)$$

Où  $a_{w1}$  et  $a_{w2}$  sont les activités ioniques des eaux de chaque réservoir et  $V_w$  le volume molaire de l'eau.

Cependant, dans la plupart des cas, ces membranes ne sont pas idéales et laissent également diffuser des ions, créant un processus de transport couplé chimico-osmotique.

Lors d'une expérience osmotique, consistant à établir un gradient de concentration à travers une roche argileuse, la différence de pression observée est généralement moindre que celle qui peut être obtenue en cas de membrane idéale. Le rapport entre cette pression et la différence de pression osmotique théorique qu'il y aurait si la membrane était idéale (i.e. pas de flux de soluté) est le coefficient de réflexion ou d'efficacité osmotique (Staverman

$$1952) : \varepsilon = \frac{\Delta P}{\Delta\pi}\bigg|_{q=0} \quad (3)$$

### 3 MODÈLE

Equations de transport couplé

On part de la loi de Darcy incluant un terme représentant le flux osmotique :

$$\vec{U} = -\frac{\bar{k}}{\mu} \vec{\nabla}P + \frac{\varepsilon \bar{k}}{\mu} \vec{\nabla}\pi \quad (4)$$

Où  $\bar{k}$  est le tenseur de perméabilité intrinsèque du matériau,  $\mu$  la viscosité dynamique de l'eau (Pa.s),  $\varepsilon$  l'efficacité osmotique,  $\pi$  la pression osmotique (Pa). Pour des concentrations inférieures à 1 mol/L, on peut écrire l'approximation de Van't Hoff (Fritz, 1982) :

$$\pi \approx \nu RT C \quad (5)$$

où  $\nu$  est le nombre de types de constituants ioniques,  $T$  la température (K),  $C$  la concentration (mol/L) et  $R$  la constante des gaz parfait ( $J.K^{-1}.mol^{-1}$ ).

D'après (4) et (5), on a donc :

$$\vec{U} = -\frac{\bar{k}}{\mu} \vec{\nabla}P + \frac{\varepsilon \bar{k} \nu RT}{\mu} \vec{\nabla}C \quad (6)$$

Équation de continuité :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{U} + \frac{S_s}{\rho g} \frac{\partial P}{\partial t} = 0 \quad (7)$$

avec  $S_s$  l'emmagasinement spécifique et  $\rho$  la masse volumique de l'eau.

On remplace  $U$  par son expression (6) et cette équation est couplée à celle de diffusion. On a donc un système de deux équations différentielles

$$\vec{\nabla} \cdot \left( \frac{\bar{k}}{\mu} \vec{\nabla}P - \frac{\varepsilon \bar{k} \nu RT}{\mu} \vec{\nabla}C \right) = \frac{S_s}{\rho g} \frac{\partial P}{\partial t} \quad (8)$$

$$D \nabla^2 C = \frac{\partial C}{\partial t} \quad (9)$$

Equations dans la chambre

$$\text{D'après l'équation de continuité et la loi d'état de l'eau : } \frac{dV}{V} = -\frac{d\rho}{\rho} = \beta_R dP \quad (10)$$

$$\text{On a : } V_R \beta_R \frac{dP}{dt} = -S_R U \Big|_{r=r_R} \quad (11)$$

Equation de continuité pour les concentrations :

$$V_R \frac{dC}{dt} = -\phi|_{r=r_R} \omega S_R \quad (12)$$

$$\text{avec } \phi = -D\nabla C \quad (13)$$

conditions initiales :

$$c(r,0)=c_0 \quad (14)$$

$$c_R(0)=c_I \quad (15)$$

$$p(r,0)=p_R(0)=p_0 \quad (16)$$

conditions aux limites :

$$c_R(t) = c(r_R,t) \quad (17)$$

$$dc/dr (r_C,t)=0 \quad (18)$$

$$p_R(t)=p(r_R,t) \quad (19)$$

$$dp/dr (r_C,t)=0 \quad (20)$$

où l'indice R correspond au réservoir et l'indice C à la carotte, avec V le volume, S la surface,  $\beta$  la compressibilité ( $\text{Pa}^{-1}$ )

Ces équations sont traitées en différences finies sur un maillage régulier de 1 mm de côté pour un échantillon.

## **4 EXPÉRIENCE DE LABORATOIRE**

### **4.1 PRINCIPE**

De nombreuses expériences osmotiques ont été effectuées sur des disques d'argiles (Fritz 1983, Keijzer 2001, Malusis 2001) mais peu sur des carottes.

L'objectif est de mettre en place une expérience osmotique sur carotte dont la modélisation permettra de déterminer les paramètres de couplage du matériau, tels que coefficient de diffusion, perméabilité, coefficient d'emmagasinement et efficacité osmotique.

Pour cela, un réservoir est foré au centre de la carotte et une chambre de test est ainsi créée et isolée. La carotte est d'abord resaturée avec une solution synthétique de composition proche de l'eau porale, puis un pulse test est réalisé afin de déterminer la compressibilité du système ainsi que les propriétés hydrauliques du matériau. Un gradient de concentration est ensuite mis en place en remplaçant l'eau du réservoir par une solution plus concentrée, ce qui provoquera un afflux d'eau venant du milieu argileux et une augmentation de pression dans la chambre.

Le suivi des pressions dans la chambre est assuré en continu dès le début de la phase de resaturation et toutes les eaux synthétiques sont préalablement dégazées à l'azote.

### **4.2 MATÉRIELS ET MÉTHODES**

#### **4.2.1 PRÉPARATION DE L'ÉCHANTILLON**

##### **4.2.1.1 Chambre de test**

Le forage PH4 réalisé fin 2006 a atteint pour la première fois les calcaires aquifères du Carixien. Nous disposons d'une carotte de 63mm de diamètre pour 10cm de haut, prélevée dans ce forage à 10m de profondeur (Toarcien supérieur). Dès leur sortie du forage, ce type d'échantillon est conservé en résine époxy® afin de limiter les pertes d'eau par évaporation et les effets de décompression mécanique.

Sur la face de la carotte qui sera percée, une connexion en acier est collée à l'Araldite® puis un puits de 24mm de diamètre est foré, avec une perceuse sur colonne, dans l'axe de la carotte sur environ 9,5cm de hauteur. Un corps mort en PMMA (polyméthacrylate de méthyle) de 20 mm de diamètre et 9 cm de haut est placé à l'intérieur du mini forage et permet de conserver une grande surface de contact eau de test/argile tout en diminuant le volume de la chambre, ce qui limite et diminue les temps de réponse de l'expérience. Le réservoir est ensuite rempli d'eau synthétique de composition aussi proche que possible de l'eau porale (voir composition tableau 4) puis fermée et reliée à des connexions en acier. Un capteur de pression fait

également partie du montage (figures 13 et 14). Le volume d'eau contenue dans le réservoir et le circuit associé est de 23,4 mL. Le système est, de plus, placé en enceinte thermostatée à  $25\pm 0,1^{\circ}\text{C}$ . Les caractéristiques géométriques de l'échantillon sont résumées dans le tableau 5.

élément	concentration (mol/L)
Na+	1.39E-02
HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	4.00E-03
Cl <sup>-</sup>	9.86E-03
total	1.39E-02

Tableau 4 : Composition de l'eau de saturation

Diamètre carotte (mm)	63
Diamètre réservoir (mm)	24
Hauteur carotte (mm)	100
Hauteur réservoir (mm)	950
Volume corps mort (mL)	28,2
Volume eau de test (mL)	23,4
Surface de contact eau de test/argile (mm <sup>2</sup> )	71

Tableau 5 : Caractéristiques géométriques de la carotte

#### 4.2.1.2 Resaturation

Le forage du réservoir induit une désaturation de l'échantillon. Afin de le resaturer, une ligne hydraulique saturée d'eau synthétique est connectée au réservoir et placée en hauteur, imposant ainsi la pression de l'échantillon.

Lorsque la pression mesurée est stabilisée (dans le cas présent à 122 kPa), la carotte est considérée comme saturée. Un volume d'eau de 4 mL est entré dans l'échantillon.

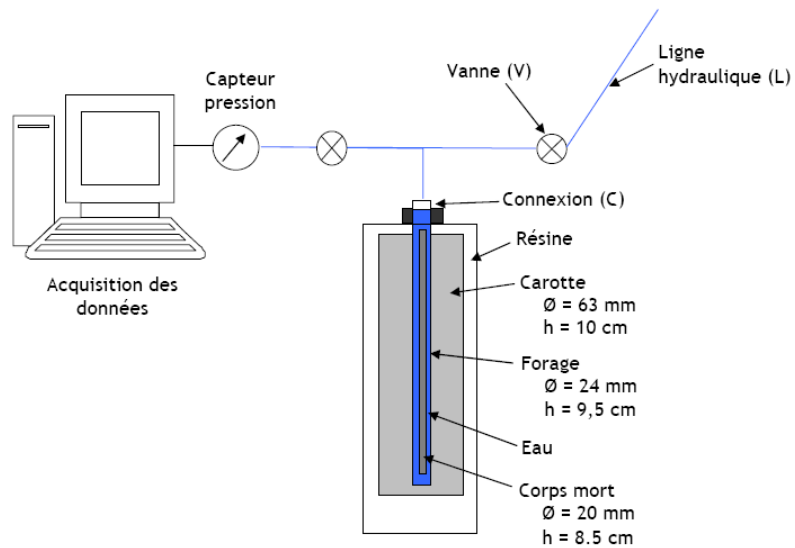


Figure 13 : Schéma du montage expérimental, en bleu les capillaires et réservoirs, saturés.



Figure 14 : Photo du dispositif

#### 4.2.2 PULSE-TEST

Le pulse-test est une méthode de détermination des paramètres hydrauliques d'un matériau très peu perméable basé sur la diffusion de pression.

Une fois que la resaturation est terminée et la pression stabilisée dans la chambre, on y crée une brève dépression, ou surpression qui permet de déterminer la compressibilité du système. Le système étant fermé et non infini, il se restabilise à une pression intermédiaire entre la

pression initiale et celle du pulse. L'interprétation du retour à l'équilibre permet la détermination des paramètres hydrauliques : transmissivité et coefficient d'emmagasinement. Sur l'échantillon étudié, deux pulses ont été réalisés. Le premier en surpression, soit une injection d'eau dans le réservoir par l'intermédiaire de la ligne hydraulique (L). Le second en dépression est provoqué par l'ouverture de la vanne (V) qui induit une chute de pression immédiate dans la chambre. Les volumes d'eau entrés et sortis de la chambre sont facilement accessibles par lecture des variations de hauteur d'eau le long de la ligne (L).

### 4.2.3 OSMOSE

Afin de créer un choc osmotique, l'eau du réservoir de la carotte doit être remplacée par une solution plus concentrée. Le rapport de concentration usuellement utilisé pour ce type d'expérience est de 10 fois la concentration porale afin que le gradient chimique soit suffisamment marqué mais que les propriétés de membrane des argiles ne soit pas altérées par une concentration trop forte qui, en réduisant l'épaisseur de la couche diffuse, diminuerait le coefficient d'efficacité osmotique (voir partie 2.2.1)

Ici, pour la fabrication de l'eau de test, les concentrations de chaque élément ont été multipliés par dix par rapport à la composition de l'eau porale de référence présentée en partie 12.4 (voir composition tableau 6)

sel	concentration (g/L)	masse molaire (g/mol)	concentration (mol/L)	élément	concentration (mol/L)
NaCl	2.92E+00	5.84E+01	4.99E-02	Na+	1.17E-01
KCl	1.64E-01	7.46E+01	2.21E-03	K+	2.21E-03
CaCl <sub>2</sub> .2H <sub>2</sub> O	5.59E-01	1.47E+02	3.80E-03	Ca <sup>++</sup>	3.80E-03
MgCl <sub>2</sub> .6H <sub>2</sub> O	7.73E-01	2.03E+02	3.80E-03	Mg <sup>++</sup>	3.80E-03
NaHCO <sub>3</sub>	4.79E+00	8.40E+01	5.70E-02	HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	5.70E-02
Na <sub>2</sub> S <sub>2</sub> O <sub>3</sub> .5H <sub>2</sub> O	1.24E+00	2.48E+02	5.00E-03	S <sup>-</sup>	5.00E-03
				Cl <sup>-</sup>	6.74E-02
				total	1.47E-01

Tableau 6 : Composition de l'eau de test synthétique

Dans la configuration du système (voir schéma figure 13), le réservoir n'est directement connecté qu'à un seul capillaire. Il n'est donc pas possible d'en changer l'eau sans ouvrir la connexion (C). Afin de conserver la pression d'équilibre de la carotte, la ligne (L) est saturée d'eau de test (injection grâce à une seringue par le bas de la ligne pour éviter les bulles d'air), placée à une hauteur adéquate et la vanne (V) ouverte.

$$h_{\text{ligne}} (cm) = P_{\text{équilibre}} (cm \text{ d'eau}) - P_{\text{atmosphérique}} (cm \text{ d'eau}) + h_{\text{capteur pression/sol}} (cm)$$

$$1kPa = 10cm \text{ d'eau}$$

$$h_{\text{ligne}} = (125,2 - 99,2) * 10 + 32,5 = 292,5 \text{ cm}$$



L'extrémité haute de la ligne aboutit à un réservoir d'eau de test. La connexion (C) de la carotte est alors ouverte, le réservoir vidé puis rempli d'eau de test, le reste du circuit saturé de cette même eau et la connexion revissée. La vanne (V) peut alors être refermée.

Cette manipulation délicate doit être réalisée avec rapidité et précision afin d'éviter au maximum l'ajout d'air dans le système, ce qui en modifierait la compressibilité, ainsi que les variations de pression qui créeraient des effets de pulses se superposant au signal osmotique. En figure 15 est présenté l'enregistrement des pressions pendant cette phase de changement de fluide. Les variations de pressions générées par la manipulation sont de l'ordre de 0.2 à 2 kPa, c'est-à-dire, d'influence négligeable à l'échelle de l'expérience. À noter tout de même, une chute de pression constatée dès la reconnexion du capteur de pression due à un mauvais serrage de la connexion de la carotte.

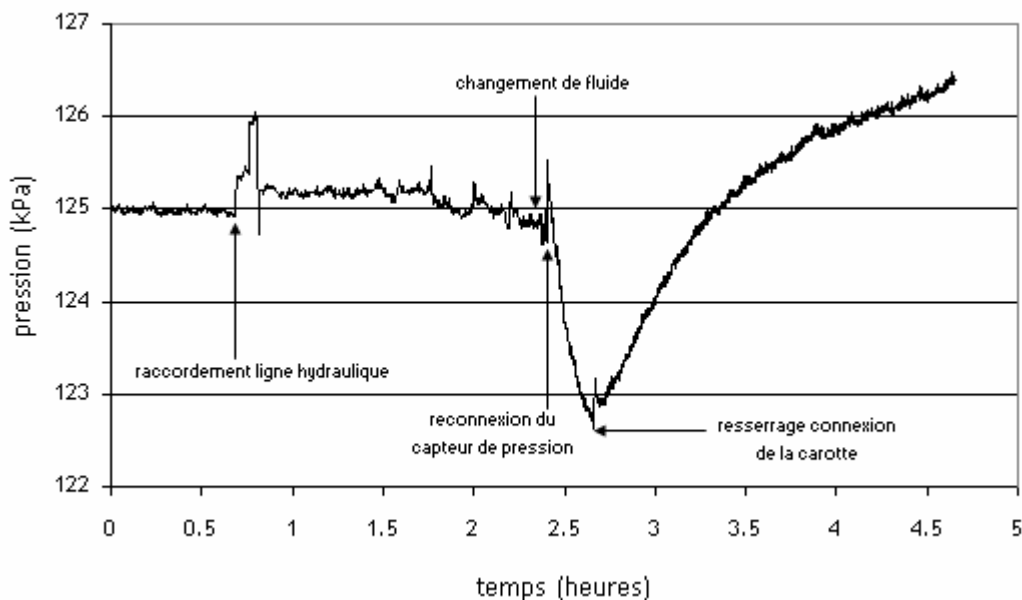


Figure 15 : Suivi pressions pendant le changement de fluide de la chambre

## 4.3 RÉSULTATS

### 4.3.1 PULSE-TEST

#### Pulse en injection

Après resaturation, la pression dans la chambre est stabilisée à 122,65 kPa. On la considère donc à l'équilibre avec la pression interstitielle et un pulse peut être réalisé.

L'injection forcée de 2,58mL d'eau par la ligne hydraulique crée une surpression à 301,95 kPa qui redescend ensuite à 222 kPa au bout de 13 jours (figure 16).

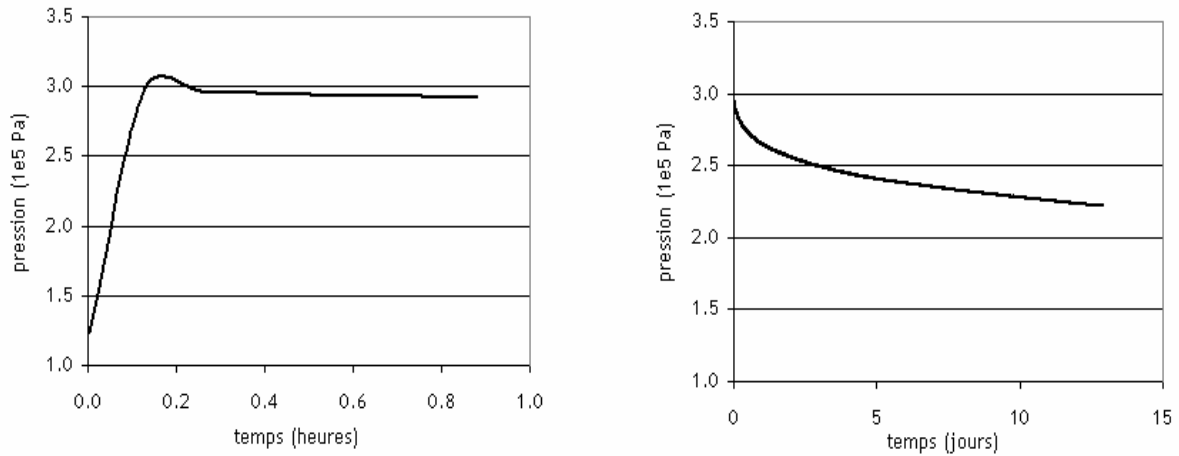


Figure 16 : Résultats du pulse en injection, surpression et retour à l'équilibre

Pulse en dépression

Après le premier pulse, la carotte a été débranchée du capteur de pression, qui était nécessaire à une autre expérience, puis rebranchée quelques jours plus tard. La pression chute au moment du branchement puis semble se stabiliser à 206kPa. Le pulse est donc réalisé quelques heures plus tard. La pression chute à 110,15kPa pour une sortie de 0,63 mL d'eau et d'une bulle d'air de 0,82mL.

Trois jours plus tard, la pression est stabilisée à 125kPa et on considère l'équilibre atteint. (voir figure 17)

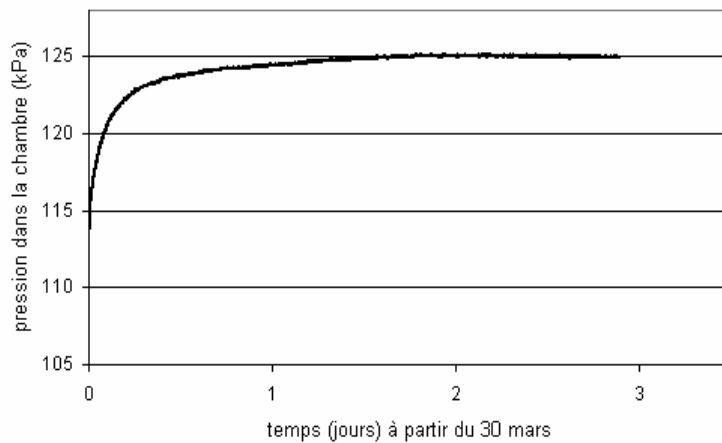


Figure 17 : Résultats du pulse-test en dépression, retour à l'équilibre de la pression

Le tableau 7 présente les résultats de ces deux pulses.

	V total (mL)	Pi (kPa)	Ppulse (kPa)	dV (mL)
Pulse injection	23,4	122,65	301,95	2,58
Pulse dépression	23,4	206,5	110,15	0,63

Tableau 7 : Résultats des pulses

### 4.3.2 TEST OSMOTIQUE

En raison de différents incidents techniques, il y a des absences de données pour certaines périodes. Ces données ont généralement pu être reconstituées ou extrapolées, le suivi des pressions dans la chambre depuis le changement d'eau est présenté en figure 18.

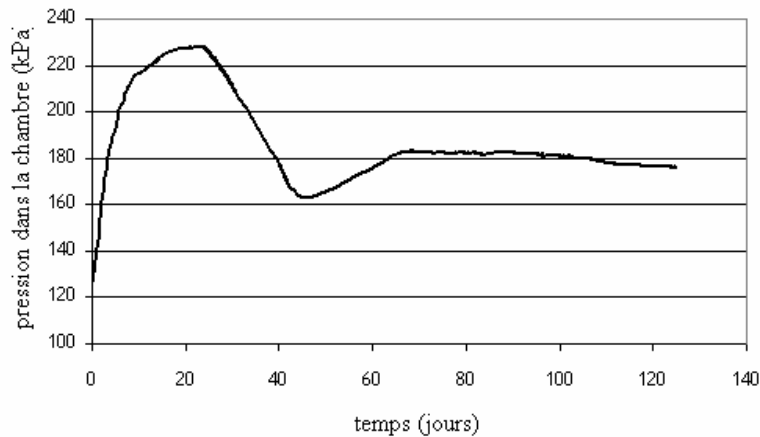


Figure 18 : Suivi des pressions dans la chambre de test sur quatre mois

On observe plusieurs phases.

- Dès le changement d'eau, on constate une régulière augmentation de pression d'environ 13kPa/jour pendant la première semaine qui s'adoucit ensuite à 1,5kPa/jour durant la deuxième semaine puis à 0,3 kPa/jour la troisième semaine. Le 23ème jour, un maximum à 228kPa est atteint.
- dès le 24ème jour, la pression commence à diminuer brutalement, -3,4 kPa/jour jusqu'à 46 jours ou un minimum est atteint à 163 kPa.
- remontée 1kPa/jour du 46 au 66ème jour
- stabilisation aux alentours de 182 kPa jusqu'au 96ème jour
- descente en pente douce

## 4.4 MODÉLISATION ET INTERPRÉTATION

### 4.4.1 PULSE TEST

#### Compressibilité

C'est la variation de volume d'un système sous l'effet d'une variation de pression. Pour l'eau, elle est de l'ordre de  $5.10^{-10} \text{ Pa}^{-1}$ . Elle est déterminée à partir des résultats des pulses :

$$\beta_R = \frac{dV}{V_{\text{eau total}} dP} \quad (21)$$

Elle est de  $6,1.10^{-7} \text{ Pa}^{-1}$  d'après le pulse en injection et de  $2,8.10^{-7} \text{ Pa}^{-1}$  d'après le pulse en dépression, soit environ deux fois plus faible. Cette diminution est causée par la sortie d'air au moment de la dépression qui rend par conséquent le système moins compressible.

Ces valeurs sont du même ordre de grandeur que celles obtenues à partir de pulses réalisées sur des carottes d'argiles prélevées dans le laboratoire souterrain de Mont Terri et pareillement équipées (Savoie, 2007).

### Transmissivité et coefficient d'emmagasinement

Différentes méthodes d'interprétation de retour à l'équilibre d'un système après un pulse peuvent aboutir à une estimation de la perméabilité et de l'emmagasinement du milieu. Sont présentés ici une méthode analytique et les résultats obtenus à partir du modèle numérique.

### *Solution analytique de Novakowski et van de Kamp*

En 1996 Novakowski et van der Kampf proposent une solution analytique à l'équation de diffusion en coordonnées radiales avec une condition de flux nul sur les bords du système. Cette solution peut être adaptée à une diffusion de pression, et non de concentration.

L'équation de diffusion de pression en coordonnées radiales et en deux dimensions s'écrit :

$$\frac{\partial p}{\partial t} = D_h \frac{\partial^2 p}{\partial r^2} + D_h \frac{\partial p}{\partial r} \quad (22)$$

$$r_R < r < r_C$$

où  $p$  est la pression ;  $r$  la distance à partir du centre du réservoir (avec  $r_R$  le rayon du réservoir et  $r_C$  le rayon de la carotte) ;  $D_h$  la diffusivité hydraulique ( $D_h = T/S$  ou  $T$  est la transmissivité ( $\text{m}^2/\text{j}$ ) et  $S$  le coefficient d'emmagasinement)

Les conditions initiales pour l'équation (22) sont :

$$p(r, 0) = P_0 \quad (23)$$

$$p_R(0) = P_1 \quad (24)$$

Les conditions aux limites de l'équation (22) sont :

$$p_R(t) = p(r_R, t) \quad (25)$$

$$\frac{\partial p}{\partial r}(r_C, t) = 0 \quad (26)$$

Solution Savoie pour une diffusion de pression, d'après Novakowski et van der Kamp dans l'espace de Laplace :

$$F_p = \frac{P_1}{P_0 \cdot p} + \frac{K_1(\sqrt{p} \times r_{dc}) \times I_0(\sqrt{p}) + I_1(\sqrt{p} \times r_{dc}) \times K_0(\sqrt{p}) \times \frac{(P_0 - P_1)}{P_0}}{K_1(\sqrt{p} \times r_{dc}) \times (p \cdot I_0(\sqrt{p}) - 2 \times \alpha \times \sqrt{p} \times I_1(\sqrt{p})) + I_1(\sqrt{p} \times r_{dc}) \times (p \cdot K_0(\sqrt{p}) + 2 \times \alpha \times \sqrt{p} \times K_1(\sqrt{p}))} \quad (27)$$

Où

$r_{dc}$  rapport  $r_C/r_R$  adimensionnel

$$\alpha = \frac{S \times \pi \times r_R^2}{V_w \times C_w \times \rho_w \times g}$$

paramètre de Bredehoeft et Papadopoulos (1980) avec  $S$  l'emmagasinement,  $V_w$  le volume d'eau ( $L^3$ ) ;  $C_w$  la compressibilité du système ( $Pa^{-1}=LT^2M^{-1}$ ) ;  $\rho_w$  la masse volumique de l'eau ( $ML^{-3}$ ) ;  $g$  l'accélération du champ de pesanteur

$p$  la variable de Laplace ( $k \cdot \ln 2 / t_D$ )

$t_D$  adimensionnement du temps ( $t_D = tDh/r_R^2$ )

$I_0, I_1, K_0, K_1$  premier et deuxième ordre des fonctions de Bessel, respectivement de première et deuxième espèce

Une inversion numérique de la transformée de Laplace a été développée par Savoye et al (2006) sous « Mathematica 5.2 » en utilisant l'algorithme de De Hoog et al (1982). Pour caler les perméabilités et coefficients d'emmagasinement nous avons utilisé ce programme.

Pour le pulse en injection, le meilleur calage a été obtenu avec  $k=1.10^{-20} m^2$  (ici,  $k \approx T \cdot 1.10^{-6}$ ) et  $Ss=7,5.10^{-4} m^{-1}$  (ici,  $Ss=S/1.10^{-1}$ ) et pour le pulse en dépression : :  $k = 6.10^{-20} m^2$  et  $Ss=3,8.10^{-5} m^{-1}$  (voir figures 19, 20 et tableau 8).

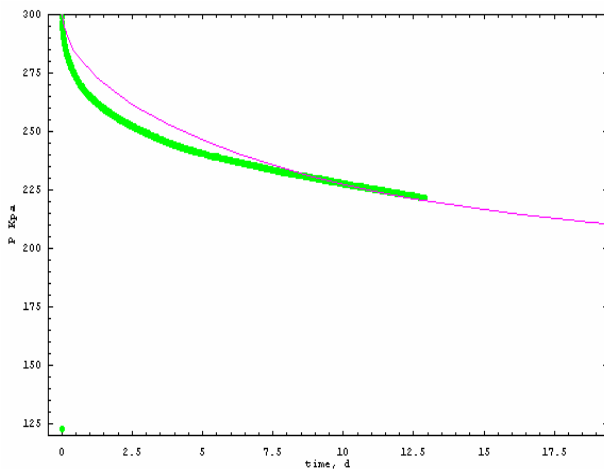


Figure 19 : Calage pulse injection sur solution analytique avec  $k = 1.10^{-20} m^2$  et  $Ss = 7,5.10^{-4} m^{-1}$  (en vert les données)

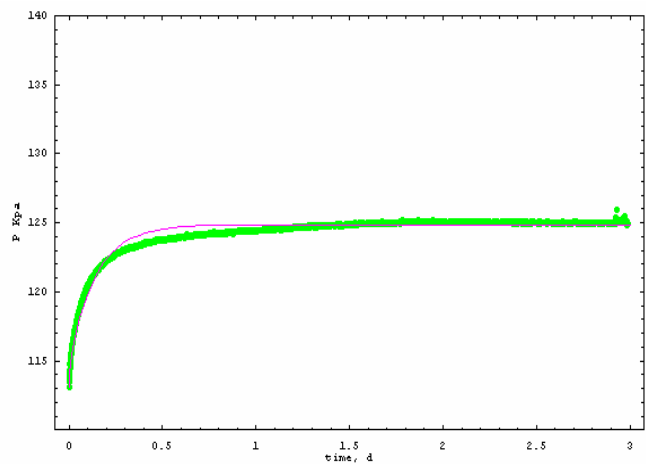


Figure 20 : Calage pulse dépression sur solution analytique avec  $k = 6.10^{-20} m^2$  et  $Ss = 3,8.10^{-5} m^{-1}$  (en vert les données)

#### Calage du pulse à l'aide du modèle numérique

Les résultats des modélisations des deux pulses sont présentés en figures 21 et 22 et résumés dans le tableau 8. On remarque que par rapport au modèle analytique, les perméabilités optimales données par le modèle numérique sont deux fois plus fortes ( $2.10^{-20} m^2$  sur le pulse injection et  $1,2.10^{-19} m^2$  sur le pulse dépression. De même pour le stockage spécifique du pulse

en dépression ( $6,3e-5m^{-1}$ ). Les deux modèles donnent le même emmagasinement sur le pulse en injection ( $7,5e-4m^{-1}$ ).

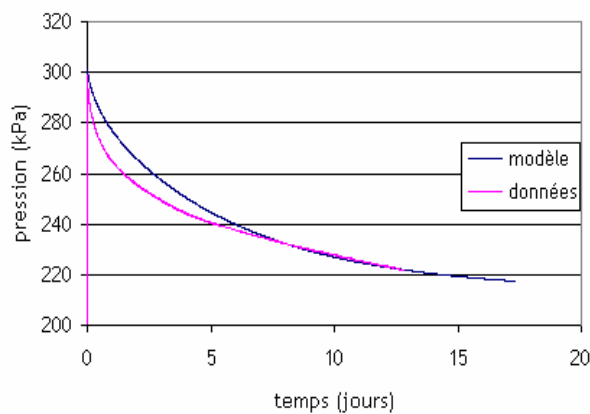


Figure 21 : Pulse en injection, résultat de modélisation avec  $k = 2e-20 m^2$  et  $Ss = 7,5.10^{-4} m^{-1}$

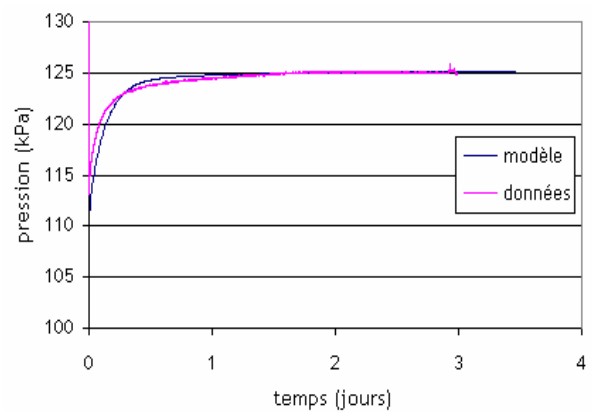


Figure 22 : Pulse en dépression,  $k = 1,2e-19 m^2$  et  $Ss = 6,3e-5 m^{-1}$

	Compressibilité $Pa^{-1}$	Analytique (N&K)		Numérique	
		$k (m^2)$	$Ss (m^{-1})$	$k (m^2)$	$Ss (m^{-1})$
Pulse injection	$6,1.10^{-7}$	$1.10^{-20}$	$7,5.10^{-4}$	$2.10^{-20}$	$7,5.10^{-4}$
Pulse dépression	$2,8.10^{-7}$	$6.10^{-20}$	$3,8.10^{-5}$	$1,2.10^{-19}$	$6,3.10^{-5}$

Tableau 8 : Résultats des pulses, comparaison modèle analytique et numérique

Les différences de résultats donnés par les deux modèles ne sont pas notables, les paramètres restent du même ordre de grandeur.

Plus remarquables sont les écarts constatés entre les deux pulses. Les perméabilités sont cinq fois plus fortes et les emmagasiments plus de dix fois plus faibles sur le pulse en dépression que sur le pulse en injection. Ces différences peuvent être dues à la chute de pression causée par le débranchement /rebranchement de la carotte entre les deux pulses qui avait causé une chute de pression (partie 4.3.1) et un artéfact possible au pulse en dépression rendant son interprétation délicate.

D'autre part, d'après la courbe de suivi de l'injection (figure 16) et les modélisations (figures 19 et 21), le plateau de ce pulse ne semble pas être atteint ce qui conduit d'une part à probablement sous-estimer le stockage lors du calage et d'autre part à réaliser le second pulse à partir d'une pression dans la chambre qui n'est pas équilibrée avec la pression interstitielle.

On remarque également, sur chacun des pulses, que l'évolution des pressions d'après les modélisations est d'abord plus lente puis plus rapide que celle mesurée expérimentalement. Ceci traduit un effet de double perméabilité due au forage. La fracturation qu'il cause dans la zone voisine du réservoir induit une augmentation locale de la perméabilité par rapport à celle

du milieu sain. Ainsi, la perméabilité utilisée sur le calage des pulses est sans doute surestimée par rapport à celle du milieu sain.

Même si le pulse en dépression est le plus intéressant du point de vue du suivi car le plateau est nettement établi, le pulse en injection est plus fiable d'un point de vue expérimental. En effet nous avons vu que lorsque le pulse dépression a été réalisé, l'équilibre des pressions dans la carotte n'était probablement pas atteint. Ce pulse a néanmoins permis l'évacuation de l'air du système qui est donc mieux saturé et moins compressible.

L'interprétation d'un pulse test réalisé *in-situ* dans le forage PH1, à 40m de profondeur, a donné un coefficient d'emmagasinement spécifique de l'ordre de  $1e-6m^{-1}$  (Bertrand et al 2002) or ici, ils seraient de un à deux ordres de grandeurs supérieurs à ces valeurs. Le même phénomène a été observé à Mont-Terri et a été attribué au gonflement et à la fracturation due au forage (Horseman 2006, Croisé et al 2004, Harrington et al 2001). Le pulse *in-situ* donnait également des perméabilités de l'ordre de  $1.10^{-21}$  à  $1.10^{-22}$  m<sup>2</sup>, soit deux à trois ordres de grandeurs plus fortes que celles déterminées ici sur carotte. Cet écart peut également être pour partie attribuable à la fracturation due au forage du réservoir et éventuellement au carottage.

#### 4.4.2 OSMOSE

Le modèle TLM, établi à l'aide des expressions de flux couplés proposées par Revil et Leroy (2004) permet d'avoir une estimation de l'efficacité osmotique du matériau à partir de ses propriétés de surface présentées en tableau 2 (rayon de pore, surface spécifique, CEC) et des concentrations des eaux utilisées. Ici, l'efficacité osmotique se situerait donc aux alentours de 0,7 – 0,8.

Le modèle numérique développé à l'UMR Sisyphe offre la possibilité d'intégrer le TLM à la modélisation de l'expérience. Mais ici, le choix a été fait de considérer l'efficacité osmotique comme un paramètre constant de calage.

Le modèle de transport couplé permet donc un ajustement sur les données expérimentales à partir de quatre paramètres : le coefficient de diffusion, la perméabilité intrinsèque, le coefficient d'emmagasinement spécifique et le coefficient d'efficacité osmotique.

Une étude sur l'influence et la sensibilité de ces paramètres nous permet de constater que la perméabilité joue principalement, et de façon importante, sur la vitesse de la montée en pression. Le coefficient d'emmagasinement influe également sur la vitesse de montée ainsi que sur la pression maximale atteinte, un fort emmagasinement ralentit la montée en pression et le pic est moins important.

Le coefficient de diffusion contrôle essentiellement la vitesse de retour à l'équilibre de la pression. Le coefficient d'efficacité osmotique joue principalement sur la pression maximale atteinte.

Suite aux réflexions suscitées par les résultats des pulses, un premier calage, présenté en figure 23 est réalisé à partir de la compressibilité obtenue par le pulse en dépression (sous réserve que le changement d'eau n'a pas introduit d'air dans le système) et les perméabilités et coefficients d'emmagasinement de la modélisation du pulse en injection. La détermination de ces deux derniers paramètres à partir du pulse en dépression ne nous a pas semblé fiable et effectivement, ils ne permettent pas de modéliser une réponse osmotique correspondant aux données. Elle serait dans ce cas bien trop rapide (montée en pression sur une durée de l'ordre de la journée, voire moins) et le pic de pression bien inférieur à celui observé.

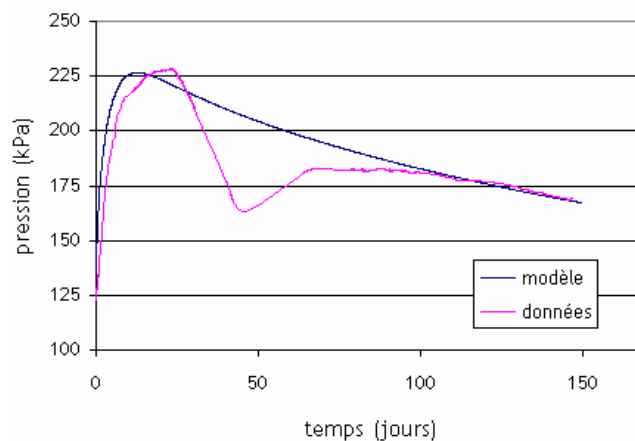


Figure 23 : Résultats d'une modélisation avec les paramètres :  $k$  et  $S_s$  du pulse injection ( $k=2.10^{-20} \text{ m}^2$  ;  $S_s=7,5.10^{-4} \text{ m}^{-1}$ ) et la compressibilité du pulse dépression ( $2,8.10^{-7} \text{ Pa}^{-1}$ ) ainsi que  $D=7.10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$  ; efficacité osmotique = 0,28

Ce calage semble confirmer le résultat du pulse en surpression, soit une perméabilité de  $2.10^{-20} \text{ m}^2$  (conductivité hydraulique de l'ordre de  $1.10^{-13} \text{ m/s}$ ) et coefficient d'emmagasinement spécifique de  $7.10^{-4} \text{ m}^{-1}$ . Le coefficient de diffusion de  $7.10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$  est du même ordre de grandeur que ceux habituellement déterminés à Tournemire. Le coefficient d'efficacité osmotique se situerait aux alentours de 30%.

Cependant, la montée en pression calculée par le modèle à partir de ces paramètres est un peu rapide, treize jours soit dix de moins que ne le dicte l'expérience. Une hypothèse expliquant cette avance du modèle serait une entrée d'air dans la chambre lors du changement de fluide et par conséquent, une compressibilité plus forte pendant l'expérience osmotique que lors du pulse en dépression. La figure 24 montre le résultat d'une simulation pour une compressibilité de  $6.10^{-7} \text{ Pa}^{-1}$ .



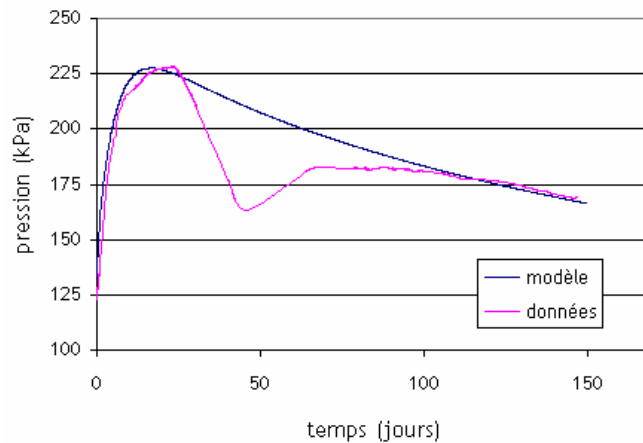


Figure 24 : Résultats d'une modélisation avec les paramètres : les  $k$  et  $S_s$  du pulse injection ( $k= 2.10^{-20} \text{ m}^2$  ;  $S_s= 7,5.10^{-4} \text{ m}^{-1}$ ) et une compressibilité plus forte ( $6.10^{-7} \text{ Pa}^{-1}$ ) ainsi que  $D= 8.10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$  ; efficacité osmotique = 0,41

Effectivement, le système est plus amorti et la pression monte plus lentement, le pic est cette fois-ci atteint au bout de 17 jours. De plus cette compressibilité accrue impliquerait que le coefficient d'efficacité osmotique du premier calage (figure 23) serait légèrement sous-estimé, 40 % serait dans ce cas plus en accord avec les données expérimentales.

Une autre incertitude expérimentale concerne la chimie de l'eau de test qui est sursaturée vis-à-vis de la calcite et de la dolomite. Ainsi, des précipitations ont pu avoir lieu au niveau de la zone d'argile en contact avec cette eau, ce qui, en obstruant les pores, diminuerait la surface poreuse de la chambre offerte à l'écoulement. Sur la figure 25 est présentée une simulation où la surface de la chambre a été divisée par deux.

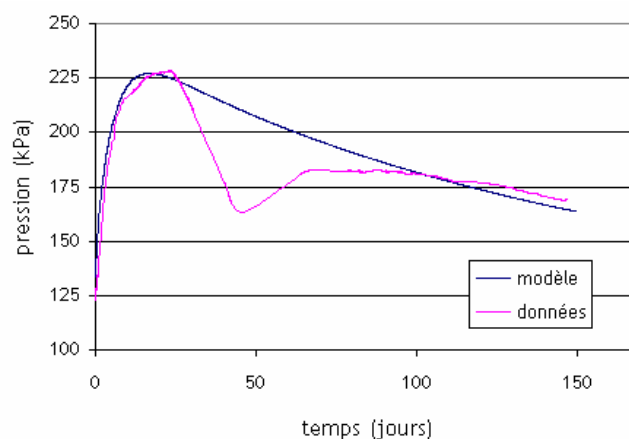


Figure 25 : Résultats d'une modélisation avec les paramètres :  $k$  et  $S_s$  du pulse injection ( $k= 2.10^{-20} \text{ m}^2$  ;  $S_s= 7,5.10^{-4} \text{ m}^{-1}$ ) et la compressibilité du pulse dépression ( $2,8.10^{-7} \text{ Pa}^{-1}$ ) ainsi que  $D= 11.10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$  ; efficacité osmotique = 0,39 ; surface de contact eau de test/argile diminuée de moitié ( $35\text{mm}^2$ )

Si l'hypothèse d'une surface de contact réduite est exacte, cela impliquerait que les coefficients de diffusion et d'efficacité osmotique ont été précédemment sous-estimés ( $D=1,1.10^{-11}$  et efficacité de 39%).

Les incertitudes expérimentales ont amené à formuler diverses hypothèses quant aux paramètres qui permettent une représentation optimale des données par le modèle. Les résultats sont résumés dans le tableau 9.

k (m <sup>2</sup> )	$2.10^{-20}$
Ss (m <sup>-1</sup> )	$7,5.10^{-4}$
D (m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> )	7 à $11.10^{-12}$
Efficacité osmotique	0,3 à 0,4

Tableau 9 : Résultats des modélisations de l'expérience osmotique

De même que ceux des pulses, ces résultats montrent des perméabilités et coefficients d'emménagement très supérieurs aux valeurs *in-situ* dont nous disposons ( $Ss \sim 1.10^{-6} m^{-1}$  et  $k \sim 1.10^{-21}$  à  $1.10^{-22} m^2$ ). Les coefficients d'efficacité osmotique compris entre 0.3 et 0.4 sont plus faibles que ceux attendus par le modèle de Revil et Leroy. Ces observations corroborent l'hypothèse d'altération de l'échantillon causée par le carottage et le forage dont nous avons discuté en partie 4.4.1. En effet, l'étroitesse de l'espace poral joue un rôle primordial dans la capacité des argiles à se comporter comme des membranes semi-perméables. En causant une augmentation de la taille des pores, la microfracturation peut donc être à l'origine d'une diminution de l'efficacité osmotique du matériau par rapport à une zone saine. Par conséquent, de même que les perméabilités et coefficients d'emménagement sont plus faibles *in-situ* que sur carotte, il ne serait pas étonnant qu'une expérience osmotique *in-situ* aboutisse à des efficacités supérieures à celles déterminées ici.

Gardons également à l'esprit que le modèle électrochimique est monovalent alors que les eaux utilisées contiennent également, certes en moindre part, des divalents. Or nous avons vu en partie 2.2.1 que l'épaisseur de la couche diffuse diminue si les cations adsorbés sont divalents. Enfin, une inconnue demeure dont aucune modélisation ne peut pour l'instant rendre compte, quelle peut-être l'origine de la brutale chute de pression à partir du 24ème jour puis de la remontée entre le 46 et le 66ème jour ?

## 4.5 PERSPECTIVES

Les résultats de ce premier test osmotique sur carotte sont encourageants. Ils nous permettent de formuler quelques recommandations quant aux expériences futures.

Une première préoccupation serait l'explication des variations de pressions pour le moins étonnantes observées entre les 24 et 66èmes jours. Compte tenu de la brutalité du phénomène et de son occurrence juste après le pic de pression, des effets de compression-décompression du système dus au montage expérimental ne sont sans doute pas à exclure et il peut être intéressant de renouveler la manipulation en tentant de mettre en place un système le moins compressible possible, i.e. remplacer au maximum les parties "plastiques" par de l'acier.

Le montage expérimental peut également être amélioré en prévoyant une ligne d'entrée et une ligne de sortie de fluide dans la chambre de test, ce qui permettrait une meilleure maîtrise de la pression durant les manipulations de changement d'eau et d'éviter les entrées d'air, dont l'influence sur la compressibilité du système est des plus importante.

Toujours du point de vue de la compressibilité, un fritté dans la chambre permettrait d'en maintenir les parois. Ici, un possible effritement des parois a pu modifier la compressibilité du système au cours de l'expérience. Un fritté aurait aussi la vertu de limiter le gonflement du matériau. Y prévoir cependant des pores de gros diamètre afin d'en éviter le colmatage qui a été constaté sur des expériences de diffusion sur carotte (Van Loon, communication personnelle).

Lors de cette expérience, les concentrations de chaque élément sont dix fois plus fortes que celles de l'eau porale. Il serait plus judicieux de n'ajouter que du NaCl. Il serait également intéressant de tester plusieurs gradients de concentration.

Un des éléments majeurs ayant été constaté est la probable fracturation de l'échantillon suite au carottage et au forage du réservoir. Il serait essentiel d'approfondir les investigations dans ce domaine, quelles sont les épaisseurs de ces zones altérées ? De quelle taille sont les fractures ? Existe-t-il malgré tout une zone de l'échantillon qui reste saine ? Ces observations devront également être intégrées au modèle.

Il serait enfin souhaitable de multiplier les expériences afin d'en tester la reproductibilité.

## 5 EXPÉRIENCE IN-SITU

Un pulse-test a déjà été réalisé en 2001 sur le forage PH1. Il a montré l'existence de deux zones concentriques au comportement différent : une zone interne et une zone externe de transmissivités respectives  $1,85.10^{-14}$  m<sup>2</sup>/s et  $6,16.10^{-15}$  m<sup>2</sup>/s pour un coefficient d'emmagasinement de  $1,24.10^{-6}$ .

### 5.1 PRINCIPE

L'expérience *in-situ* repose sur le même principe que celle de laboratoire. Le forage PH3 réalisé en 2003 et équipé d'une chambre de test scellée avec sonde de pression et température a servi de cadre à cette expérience.

La pression étant stabilisée à 258kPa, le but est de changer l'eau du forage par une eau environ dix fois plus concentrée en NaCl que l'eau porale et de récupérer un échantillon de l'eau actuellement dans la chambre afin de vérifier si elle est équilibrée avec l'eau interstitielle.

### 5.2 MATÉRIELS ET MÉTHODES

#### 5.2.1 EQUIPEMENT ET CONFIGURATION DU FORAGE

Le forage PH3 a été foré à l'air en janvier 2003 et équipé par ANTEA d'une chambre de test, scellée par un bouchon de résine et de ciment, constituée d'un massif d'environ 5L de sable de Fontainebleau très perméable dans lequel est placée une sonde reliée à deux lignes hydrauliques et munie de capteurs pression/température. La chambre a alors été resaturée dans un premier temps par 2,4L d'eau à  $4.10^{-3}$  mol/L de NaHCO<sub>3</sub>,  $6.10^{-3}$  mol/L de NaCl et 0,1mol/L de NaI, qui a dû être complétée par 1,6L d'eau provenant de l'aquifère supérieur et dont la composition est la suivante :

élément	Concentration (mol/L)
Ca <sup>++</sup>	2.35E-03
Mg <sup>++</sup>	1.08E-03
Na <sup>+</sup>	4.20E-04
K <sup>+</sup>	4.60E-05
Cl <sup>-</sup>	1.70E-04
SO <sub>4</sub> <sup>--</sup>	7.40E-04
HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	5.18E-03

Tableau 10 : Composition de l'eau de l'aquifère supérieur

Le forage a un diamètre de 96 mm dans sa partie basse et la hauteur de la chambre de test est de 1,12 m. le capteur de pression de fond se situe à 15,62 m sous le radier du tunnel et le capteur de surface à 1,46 m au dessus. Toutes les cotes sont rappelées en figure 26

## 5.2.2 CHANGEMENT D'EAU

### Mise en place

Au moment de la manipulation les différents capteurs de pression donnent :

$$P_{\text{PH3-surface}} = 88,34 \text{ kPa (cote du capteur +1,46 m)}$$

$$P_{\text{PH3-fond}} = 257,91 \text{ kPa (cote du capteur -15,62 m)}$$

$$P_{\text{atmo}} = 96,09 \text{ kPa}$$

Cote relative du capteur de fond : 17,08 m soit 168 kPa la pression relative de fond. Ici, elle est mesurée à 170 kPa ( $P_{\text{PH3-fond}} - P_{\text{PH3-surface}}$ ), le forage n'est donc quasiment pas artésien ( $2\text{kPa} \approx 20 \text{ cm d'eau}$ )

Afin de renouveler totalement l'eau de la chambre, sept litres de solution sont préparés à partir de l'eau de l'aquifère supérieur auxquels sont rajoutés 60mmol/L de NaCl afin d'avoir une eau de test entre cinq et dix fois plus concentrée que l'eau porale supposée (conductivité de l'eau préparée : 6,63mS/cm à 15,8°C). Le réservoir d'eau synthétique est placé sur une balance pour suivre le volume et le débit d'eau qui entre dans la chambre. En sortie, une pompe est reliée au circuit, le PH et la conductivité sont mesurés en continu et les eaux sont collectées (voir schéma du montage figure 26). Les pressions et températures continuent à être mesurées par la centrale d'acquisition Geomonitor.

Le circuit est entièrement saturé d'eau afin de ne pas introduire d'air dans la chambre.

Le volume d'eau à vidanger avant d'avoir l'eau représentative de la chambre est d'environ 210mL (17m de tubing à 4mm de diamètre). Les eaux de sortie sont donc dans un premier temps collectées dans des flacons de 250mL, le premier correspondra à la vidange des tubings et le deuxième à l'eau de la chambre qui sera analysée ultérieurement en laboratoire.

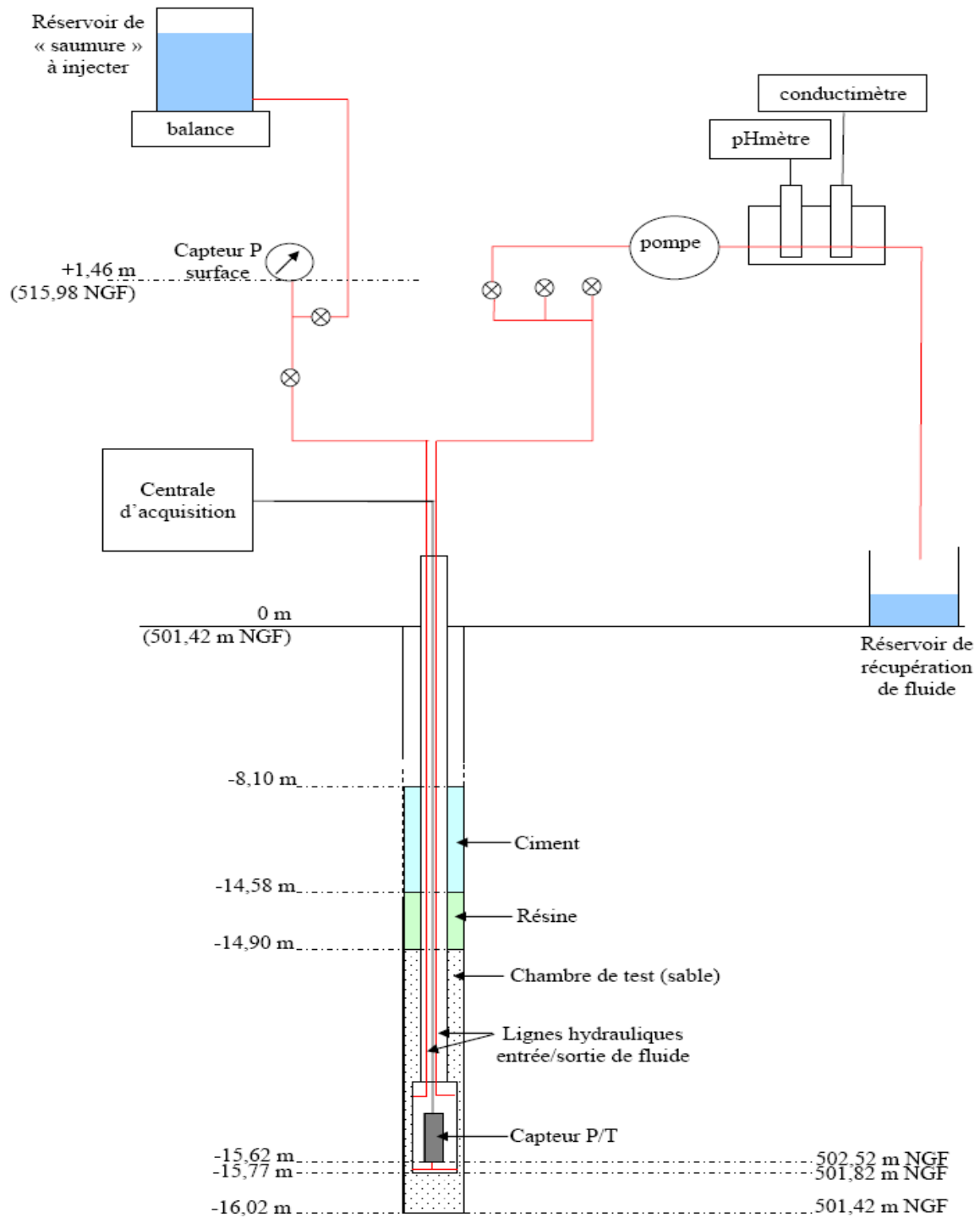


Figure 26 : Schéma du dispositif pour le changement de fluide de la chambre du forage PH3

### Première circulation

Une première circulation a été mise en place. On observe un saut de conductivité après 5 min, attribué au fait que, comme on le voit sur la figure 26, les lignes d'entrée et de sortie de la chambre se situent l'une en face de l'autre. Ainsi l'eau qui entre dans la chambre en est sans doute immédiatement pompée.

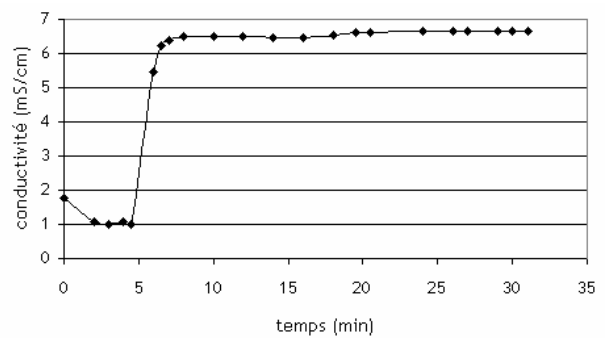


Figure 27 : Suivi des conductivités des eaux de sortie du forage, première circulation

### Deuxième circulation

Le lendemain, une deuxième circulation est mise en place avec une eau très salée (300mmol/L NaCl) dans l'idée que, même s'il n'y a qu'une petite quantité de cette eau qui peut être introduite dans la chambre, elle soit suffisante à en saler la totalité par diffusion.

En figure 28, on constate encore une fois un saut de conductivité après quelques minutes de circulation.

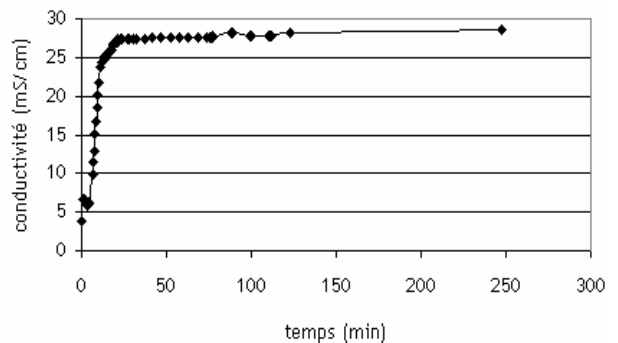


Figure 28 : Suivi des conductivités des eaux de sortie du forage, deuxième circulation

### Troisième circulation

Le lendemain, cette même eau à 300mmol/L de NaCl est utilisée pour une troisième circulation (figure 29)

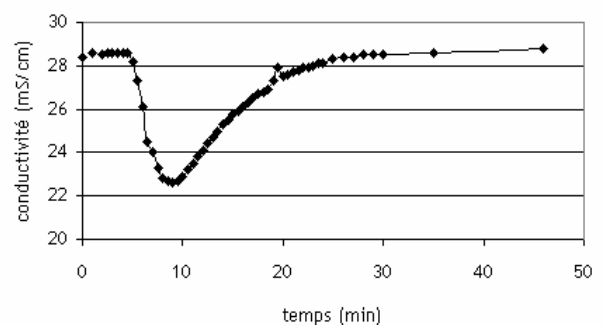


Figure 29 : Suivi des conductivités des eaux de sortie du forage, troisième circulation

### Suivi des pressions

La centrale d'acquisition Geomonitor enregistre continuellement les pressions et températures données par les différents capteurs. La figure 30 montre le suivi des pressions du capteur de fond.

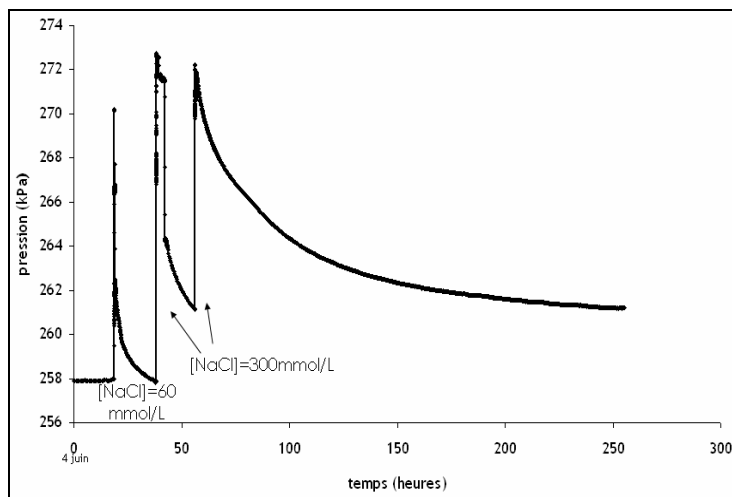


Figure 30 : Suivi des pressions dans la chambre pendant les circulations

On remarque que chaque circulation a provoqué une surpression d'une quinzaine de kPa. A ce jour, la pression est de 263kPa et aucune réponse osmotique n'a pour l'instant été identifiée.

### **5.2.3 ANALYSE DES EAUX**

Certaines eaux récoltées en sortie ont été analysées par chromatographie ionique (chromatographie échangeuse d'ions) qui a permis la détermination des concentrations en ions majeurs.

La chromatographie est une méthode de séparation d'espèces dans un mélange par partage entre une phase mobile (gaz ou liquide) et une phase stationnaire (liquide ou solide). En chromatographie ionique, le mécanisme principal qui conduit à la séparation des composés à analyser est l'échange d'ions.

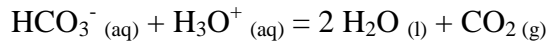
La séparation et le temps de migration des composés à éluer varient en fonction des différences d'affinité de ces composés pour les phases mobiles et stationnaires. C'est pourquoi les affinités respectives des différents ions (échantillon et éluant) doivent être comparables.

Ici, les phases fixes sont, pour les cations un gel de silice possédant des groupes carboxyliques et pour les anions une matrice de résine à base d'un polymère polystyrène (PS) divinylbenzène (DVB) sur laquelle sont greffés des groupements ammonium quaternaire échangeurs d'anions. L'éluant pour la chromatographie cationique est un mélange d'acide tartrique et dipicolinique et pour l'anionique, un mélange carbonate/bicarbonate.

La détection se fait après suppression, en sortie de colonne par un détecteur conductimétrique.



La chromatographie ne permettant pas la détermination des bicarbonates, ceux-ci ont été dosés à l'aide d'un titrateur automatique par de l'aide chlorhydrique à 2e-3 mol/L. L'équation de dosage est la suivante :



Les concentrations en bicarbonate sont ensuite déterminées à partir de la fonction de Gran.

### 5.3 RÉSULTATS ET DISCUSSION

Deux analyses ont été réalisées sur l'échantillon d'eau considérée comme étant celle du forage, les résultats moyens sont présentés dans le tableau 11

élément	concentration (mmol/L)
Na+	5.4
K+	0.1
Ca++	2.5
Mg++	1.7
NO3-	0.1
SO4--	1.4
Cl-	3.4
HCO3-	7.3

Tableau 11 : Composition de l'eau récupérée de la chambre de test, forage PH3

Les concentrations en K+, et bicarbonates sont comparables avec celles considérées comme représentatives de l'eau interstitielle du tableau 3 (K+ = 0,15mmol/L, HCO3- = 6mmol/L). Les concentrations des cations divalents sont 5 à 10 fois supérieures à cette référence et celle du chlore deux fois moindre.

Il est à noter qu'aucune trace de l'iode introduite en grande quantité en 2003 n'a été retrouvée. L'eau iodée avait été utilisée pendant la première phase de saturation. Préparée en quantité insuffisante, la circulation s'était poursuivie avec de l'eau de l'aquifère supérieur. Il est possible que la configuration des lignes d'entrée et de sortie de chambre ait ici aussi joué un rôle. Ainsi, l'eau iodée aurait été introduite uniquement dans la partie basse de la chambre alors que la partie haute contiendrait principalement de l'eau de l'aquifère supérieur ce qui expliquerait que les eaux récupérées ne contiennent pas d'iode.

Il est également envisageable que l'échantillon contienne une partie de l'eau de vidange des tubings. Cette incertitude sur la "pureté" de l'eau analysée ajoutée à la possible stratification des eaux de la chambre rend difficile d'émettre une conclusion quant à l'équilibre de l'eau du forage avec l'eau interstitielle.

## 5.4 PERSPECTIVES

Une modélisation prédictive d'une expérience *in-situ* correctement réalisée peut être effectuée à partir des paramètres de perméabilité et coefficients d'emménagement de l'ordre de grandeur de ceux obtenus *in-situ*. Les compressibilités *in-situ* sont généralement aux alentours de  $1.10^{-8} \text{ Pa}^{-1}$ . L'analyse de l'expérience de laboratoire nous a conduit à penser que l'efficacité de membrane serait sans doute plus forte sur une expérience *in-situ*. Elle est donc ici fixée à 0,6. En figure 31 est représentée la simulation à partir de ces paramètres pour une chambre de mesure d'un volume de 1L et une solution test dix fois plus concentrée que l'eau interstitielle. La pression de base utilisée est celle mesurée dans PH3, soit à 15 m de profondeur.

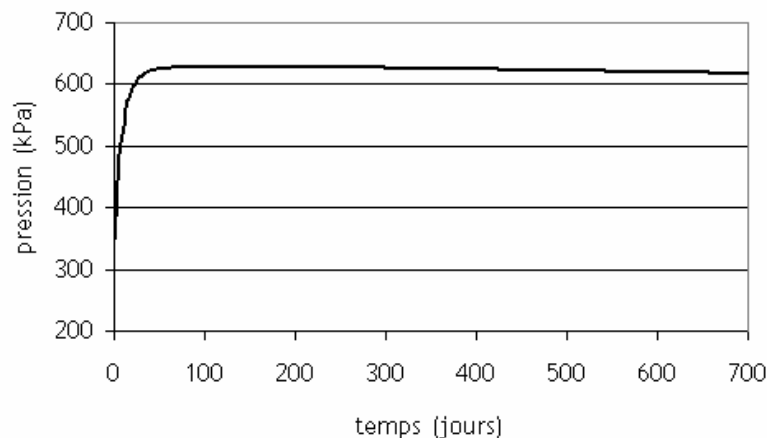


Figure 31 : Résultat d'une modélisation *in-situ* avec  $k = 1.10^{-21} \text{ m}^2$ ,  $S_s = 1.10^{-6} \text{ m}^{-1}$ , compressibilité du système =  $1.10^{-8} \text{ Pa}^{-1}$ , efficacité osmotique = 0,6

La montée en pression dure environ deux mois et atteint 620 kPa. Cependant le retour à l'équilibre étant contrôlé par la diffusion, il est extrêmement lent et prendra de nombreuses années. Néanmoins, la montée et le début de la descente peuvent être suffisants pour permettre une interprétation de l'expérience.

Un forage sera certainement réalisé dans l'unique but de mettre en place cette expérience. Afin d'en limiter la durée, il est conseillé de maximiser le rapport entre la surface et le volume de la chambre. Un fritté sera malgré tout nécessaire afin de maintenir les parois et de limiter le gonflement. Les changements de fluides seront facilités si les lignes hydrauliques d'entrée et de sortie de chambre en sont situées à chaque extrémité.

Un équipement multi-obturateur est également envisagé. Il offrirait la possibilité de tester un gradient de concentration différent dans chaque chambre mais la profondeur du forage serait limitée à 4m par la longueur des lignes hydrauliques.

Le forage, qu'il soit horizontal ou vertical, devra être suffisamment profond pour échapper à une trop grande influence de la frange capillaire. En effet, il a été observé autour des galeries

une zone sous influence de la frange capillaire qui empêche la stabilisation des pressions. Cependant, il semble que les forages horizontaux n'ont pas besoin d'aller aussi loin des galeries que les forages verticaux pour obtenir une stabilisation des pressions. Mais si un forage horizontal serait expérimentalement plus aisé à mettre en œuvre, il pose le problème d'anisotropie des coefficients de diffusion et de perméabilité dont la modélisation devra rendre compte.

Quelque soit l'option retenue : forage horizontal ou vertical, chambre unique ou multi-obturbateur, la resaturation de la (ou des) chambre(s) sera une étape essentielle et aucun changement de fluide ne pourra être envisagé avant que les pressions soient stabilisées. Cette phase "pré-expérimentale" étant susceptible de durer assez longtemps, il est recommandé de la mettre en œuvre dans les plus courts délais.

## CONCLUSION

L'expérience sur carotte a montré que les argilites de Tournemire montrent effectivement un comportement osmotique.

Cette expérience, ainsi que les pulse tests qui ont été réalisés, ont permis la détermination des paramètres hydrauliques du matériau ( $k \sim 2 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2$ ,  $S_s \sim 7,5 \cdot 10^{-4} \text{ m}^{-1}$ ). Sur des tests *in-situ*, ces valeurs sont généralement un à deux ordres de grandeur supérieures. Cet écart est couramment observé sur ce type d'expérience et attribué à la microfracturation de l'échantillon causée par le carottage et le forage du réservoir central.

La modélisation de cette expérience a également abouti à l'évaluation d'un coefficient de diffusion entre 7 et  $11 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ , valeurs classiquement obtenues à Tournemire, et d'une efficacité osmotique aux alentours de 30-40%. Cette valeur est inférieure à celle estimée à partir d'un modèle de couplage électrochimique et ici aussi, c'est la fracturation de la carotte qui peut être mise en cause et provoquer une diminution de l'efficacité osmotique du matériau. Il y a donc là un artéfact expérimental auquel il est difficile de remédier mais qu'il sera nécessaire d'étudier plus précisément.

L'interprétation de l'expérience de laboratoire a de plus permis d'émettre des hypothèses qui permettront à l'avenir d'améliorer les protocoles expérimentaux. Parmi elle sont à retenir, la préparation d'une eau de test uniquement surconcentrée en NaCl et l'élaboration d'un montage expérimental donnant la possibilité de changer l'eau du réservoir sans ouvrir le système.

Lors de l'expérience *in-situ*, le changement de fluide de la chambre de test a été rendu délicat, voire impossible, du fait de la configuration du forage. Aucune réponse osmotique n'a pour l'instant été observée et il est probable que ce ne soit pas le cas avant un certain temps du fait des trop grandes dimensions de la chambre et de la faible proportion d'eau qui a pu en être changée. Des modélisations prédictives ainsi que cette première expérience ont néanmoins permis de recommander que la future expérimentation, qui aura lieu dans le cadre d'une thèse, soit mise en route le plus tôt possible et équipé d'une chambre de test d'un volume modéré afin que les résultats en soient exploitables le plus rapidement possible.

Au cours de ce stage, et bien qu'elles ne soient pas encore stabilisées, ont été confirmées les surpressions attendues dans le forage profond PH4.

## RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

Altinier, M.V., 2006. Etude de la composition isotopique des eaux porales de l'argilite de Tournemire : inter-comparaison des méthodes de mesure et relations avec les paramètres pétrophysiques. Thèse, Université Paris XI Orsay.

Bader, S., Heister, K., 2006. The effect of membrane potential on the development of chemical osmotic pressure in compacted clay. *Journal of Colloid and Interface Science* 297, 329-340.

Barbreau, A., Boisson, J.Y., 1993. Caractérisation d'une formation argileuse – Résultats obtenus à partir du tunnel de Tournemire. Rapport d'avancement n°1 CCE-CEA n°FI 2W-CT910115, CEA/IRSN.

Bertrand, L., Lavignerie, R., Cabrera, J., Matray, J.M., Savoye, S., Enachescu, C., 2002. Instrument for measuring pore pressure and permeability in low permeability clay. ANDRA international meeting on Clays in Natural and Engineered Barriers for Radioactive Waste Confinement.

Bonin, B., 1998. Deep geological disposal in argillaceous formations : studies at the Tournemire test site. *Journal of Contaminant Hydrology* 35, 315–330.

Boisson, J.-Y., J. Cabrera, et L. De Windt, 1997. Caractérisation d'une formation argileuse - Caractérisation des propriétés de transferts au laboratoire des argilites et marnes toarciennes de Tournemire (Aveyron-France). Rapport d'avancement n°5 CCE-CEA n° FI 2W-CT91 0115, Commissariat à l'Energie Atomique / Institut de Protection et de Sécurité Nucléaire.

Bredehoeft, J.D., Papadopoulos, S.S., 1980. A Method for Determining the Hydraulic Properties of Tight Formations. *Water Resources Research* 16, 233-238.

Bresler, E., 1970, Numerical Solution of the Equation for Interacting Diffuse Layers in Mixed Ionic Systems with Nonsymmetrical Electrolytes. *Journal of Colloid and Interface Science* 33(2), 278-283.

Bresler, E., 1973. Anion Exclusion and Coupling Effects in Nonsteady Transport Through Unsaturated Soils : I. Theory. *Soils Science Society of America Proceedings* 37(5), 663-669.

Cabrera, J., Beaucaire, C., Bruno, G., De Windt, L., Genty, A., Ramanbasoa, N., Rejeb, A., Savoye, S., Volant, P., 2001. Le projet Tournemire comme support de l'expertise sur le stockage profond en milieu argileux : synthèse des programmes de recherche. Rapport IRSN/SERGD 01-19.

Cey, B.D., Barbour, S.L., Hendry, J.M., 2001. Osmotic flow through a Cretaceous clay in southern Saskatchewan, Canada. *Canadian Geotechnical Journal* 38, 1025-1033.

Croisé, J., Schlickerieder, L., Marshall P., Boisson, J.Y., Vogel, P., 2004. Hydrogeological investigations in a low permeability claystone formation : the Mont Terri Rock Laboratory. *Physics and Chemistry of the Earth* 29, 3-15.

Fisch, H.R., Bossart, P., 2002, Experiment OP : Fluid exchange in borehole BOP-1 with a 100g/L NaCl fluid. The field data set. FOWG/SGS ANDRA BGR CRIEPI ENRESA GRS IRSN JNC NAGRA OBAYASHI SCK.CEN. Technical Note 2002-21.

Fritz, S.J., Marine, I.W., 1983. Experimental support for a predictive osmotic model of clay membranes. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 47, 1515-1522.

Fritz, S.J., 1986, Ideality of clay membranes in osmotic processes : A review. *Clays and clay Minerals* 34(2), 214-223.

Garavito, A.M., De Cannière, P., Kooi, H., 2006. In situ chemical osmosis experiment in the Boom Clay at the Mol underground research laboratory. *Physics and Chemistry of the Earth* 32, 421-433.

Gueutin, P., Altmann, S., Gonçalves, J., Cosenza, P., Violette, S., 2007. Osmotic interpretation of overpressures from monovalent based triple layer model, in the Callovo-Oxfordian at the Bure site. *Physics and Chemistry of the Earth* 32, 434-440.

Gonçalves, J., Violette, S., Wendling, J., 2004. Analytical and numerical solutions for alternative overpressuring processes : Application to the Callovo-Oxfordian sedimentary sequence in the Paris basin, France. *Journal of Geophysical Research* 109, B02110. doi:10.1029/2002JB002278.

Harrington, J., Horseman, S., 2000. Laboratory Experiments on Hydraulic and Osmotic Flow in Opalinus Clay. SNHGS.SHGN ANDRA BGR ENRESA IPSN JNC NAGRA OBAYASHI SCK\_CEN. Technical Report 2000-01.

Horseman, S.T., Higgo, J.J.W., Alexander J., Harrington J.F., 1996. Water, Gas and Solute Movement Through Argillaceous Media. Technical Report, NEA/OECD, 290p.

Horseman, S.T., Harrington, J.F., Noy, D.J., Swelling and osmotic flow in a potential host rock, 2007. *Physics and Chemistry of the Earth* 32, 408-420.

IRSN/ANTEA, 2003. Station expérimentale de Tournemire (Aveyron). Installation du piézomètre PH3. Rapport d'installation sur site et suivi des mesures, A29624/A.

Jacquier, P., Ly, J., Beaucaire, C., 2004. The ion-exchange properties of the Tournemire argillite I. Study of the H, Na, K, Cs, Ca and Mg behaviour. *Applied Clay Science* 26, 163-170.

Keijzer, Th.J.S., Kleingeld, P.J., Loch, J.P.G, 1999. Chemical osmosis in compacted clayey material and the prediction of water transport. *Engineering Geology* 53, 151-159.

Keijzer, Th.J.S., Loch, J.P.G., 2001. Chemical Osmosis in Compacted Dredging Sludge. *Soil Science Society of America Journal*. 65, 1045-1055.

Leroy, P., Revil, A., 2004. A triple-layer model of the surface electrochemical properties of clay minerals. *Journal of Colloid and Interface Science* 270, 371-380.

- Luo, X., 1994. Modélisation des surpressions dans les bassins sédimentaires et des phénomènes associés. Thèse, Université Montpellier 2.
- Malusis, M.A., Shackelford, C.D., Olsen, H.W., 2001. A laboratory Apparatus to Measure Chemico-Osmotic Efficiency Coefficients for Clay Soils. *Geotechnical Testing Journal* 24(3), 229-242.
- Matray, J.M., Savoye, S., Cabrera, J., 2007. Desaturation and structure relationships around drifts excavated in the well-compacted Tournemire's argillite (Aveyron, France). *Engineering Geology* 90, 1–16
- Neuzil, C., 1995. Abnormal pressures as hydrodynamic phenomena. *American Journal of Science* 295, 742-786.
- Neuzil, C., 2000. Osmotic generation of 'anomalous' fluid pressures in geological environments. *Nature* 403, 182-184
- Novakowski, K.S., van der Kamp, G., 1996, The radial diffusion method 2. A semianalytical model for the determination of effective diffusion coefficients, porosity, and adsorption. *Water Resources Research* 32, 1823-1830.
- Noy, D.J., Horseman, S.T., Harrington, J.F., Bossart, P., Fish H.R., 2003. An experimental and modelling study of chemico-osmotic effects in the Opalinus Clay of Switzerland. FOWG/SGS ANDRA BGR CRIEPI ENRESA GRS HSK IRSN JNC NAGRA OBAYASHI SCK•CEN. Technical Report 2003-01.
- Papadopoulos, S.S., Bredehoeft, J.D., Cooper H.H., 1973. On the Analysis of 'Slug Test' Data. *Water Resources Research* 9, 1087-1089.
- Patriarche, D., 2001. Caractérisation et modélisation des transferts de traceurs naturels dans les argillites de Tournemire. Thèse, École des Mines de Paris.
- Patriarche, D., Ledoux, Michelot, J.-L., Simon-Coinçon, R., Savoye, S., 2004. Diffusion as the main process for mass transport in very low water content argillites : 2. Fluid flow and mass transport modelling. *Water Resources Research* 40, W01517, doi:10.1029/2003WR002700
- Patriarche, D., Ledoux, E., Simon-Coinçon, R., Michelot, J.-L., Cabrera, J., 2004. Characterization and modeling of diffusion process for mass transport through the Tournemire argillites (Aveyron, France). *Applied Clay Science* 26, 109– 122.
- Revil, A., 1999. Ionic Diffusivity, Electrical Conductivity, Membrane and Thermoelectric Potentials in Colloids and Granular Porous Media : A Unified Model. *Journal of Colloid and Interface Science* 212, 503-522.
- Savoye, S., Michelot, J.L, Wittebroodt, C., Altinier, M.V., 2006. Contribution of the diffusive exchange method to the characterization of pore-water in consolidated argillaceous rocks. *Journal of Contaminant Hydrology* 86, 87–104

Savoie, S., Michelot, J.L., Mifsud, A., Piedevache, M., 2007. Study of the up-scaling effect by means of the radial diffusion method applied to Opalinus Clay samples. MIGRATION'07 Conference, Munich, August 2007.

Simon-Coinçon, R. et Schmitt J.-M., 1999. Évolution géologique et histoire paléoenvironnementale du bassin des Grands Causses. Rapport technique LHM/RD/99/52, Centre d'Informatique Géologique, École Nationale Supérieure des Mines de Paris.

Staverman, A.J., 1952. Non-equilibrium thermodynamics of membrane processes. Trans. Faraday Soci. 48, 176–185.

Warren, L.A., Haack, E.A., 2001. Biogeochemical controls on metal behaviour in freshwater environments. Earth-Science Reviews 54, 261-320.



## **REMERCIEMENTS**

L'art délicat du remerciement, première...

En premier lieu, merci à Julio Gonçalves pour son travail, ses remarques et conseils toujours avisés et sa patience d'ange que je ne suis pas sûre de mériter.

Merci également à Jean-Michel Matray de m'avoir permis d'effectuer ce stage au LETS ainsi qu'à Denise Stammose, chef de laboratoire et Didier Gay, chef de service.

Ses réponses à mes questions, le temps qu'il a consacré à ce travail et ses exceptionnelles qualités de plombier/quincaillier (!! ) ont été précieuses au bon déroulement de ce stage, mes plus sincères remerciements à Sébastien Savoye.

Ici aussi pour raisons temporelles, toute ma gratitude à Isabelle Devol-Brown. Son sourire et sa gentillesse à toute épreuve m'ont toujours réchauffé le cœur.

Enfin, que serait un stage sans co-stagiaires ? Sans leur soutien ô combien nécessaire et leurs oreilles attentives ? Merci à Nadia, Fethi (co-stagiaire ET co-bureautaire!), Laure, Pierre et Warice, stages LETS/promo 2007 !