



**UNIVERSITÉ
DE LORRAINE**

**BIBLIOTHÈQUES
UNIVERSITAIRES**

AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact bibliothèque : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr
(Cette adresse ne permet pas de contacter les auteurs)

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>

**Ecole Doctorale Sciences et Ingénierie des Ressources Naturelles
(SiReNa)**

THESE DE DOCTORAT

Présentée et soutenue publiquement pour l'obtention du titre de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE DE LORRAINE

Mention : Mécanique et Génie Civil

Présenté par

Mensan Dèlwindé Gildas Cedric AGBOLI

**Etude expérimentale de l'impact de la propagation et de l'auto-
colmatage des fissures sur la perméabilité à l'eau et au gaz de
l'argilite du Callovo-Oxfordien**

Thèse soutenue à l'Université de Lorraine, le 25 juin 2024

Membres du jury

Directeur(s) de thèse :	M. Dragan GRGIC	Professeur, Université de Lorraine
	M. Albert GIRAUD	Professeur, Université de Lorraine
Président du jury :	Jérôme FORTIN	Docteur, CNRS ENS Paris
Rapporteurs :	Pierre BESUELLE	Directeur de recherche (CNRS), CNRS Université Grenoble Alpes
	Catherine DAVY	Professeure, ENSAM Angers
Examineur :	Nathalie CONIL	Ingénieur d'étude et de recherche (HDR), INERIS
Membres invités :	Gilles ARMAND	Ingénieur/docteur, ANDRA

REMERCIEMENTS

Avant tout, je dédie cette thèse à mes parents. **Maman, Papa**, c'est grâce à vous que j'ai pu cheminer jusqu'ici. Merci de tout cœur pour vos sacrifices, votre soutien constant, et pour avoir toujours cru en moi.

Dédicace à **PERSONNE**, fallait être là. Non, évidemment je rigole ! Vous avez été nombreux à être là pour moi, bien plus que je ne saurais l'exprimer ici. Merci du fond du cœur.

Je tiens à exprimer ma plus profonde gratitude à mon directeur de thèse, Prof. Dragan GRGIC, et à mon co-directeur de thèse, Prof. Albert GIRAUD, pour leur confiance et leur soutien constant. Prof. Dragan GRGIC, ta patience, ta disponibilité, ton expertise et ton engagement sans faille ont nourri mon goût pour la recherche et profondément marqué ce travail.

Mes sincères remerciements vont aussi au personnel technique des laboratoires : Mohamed MOUMNI (alias Momo), Laurent Schoumacker, Patrick GAIRE, Clément GRANCLAUDE, Christophe MORLOT, et Olivier FERRY, pour leur aide précieuse tout au long du projet. Je tiens également à remercier M. Jérôme FORTIN et le Prof. Jianfu SHAO pour leurs précieux conseils, qui ont grandement contribué à l'amélioration de mon travail.

Merci à tout le personnel de GeoRessources et à l'équipe HGM. Un grand merci à Fabrice GOLFIER, Constantin OLTEAN, Anne-Julie TINET, Long CHENG, pour vos échanges enrichissants. À tous les doctorants, postdocs et stagiaires, merci pour cette ambiance unique faite de camaraderie et de soutien. Vous avez rendu cette expérience encore plus agréable et mémorable.

Un remerciement spécial à Coffi GBEWADE pour les longues journées en salle de manipulations. Merci à Franck AMOIH alias "le Malo des Malos", pour les coups de "malo" et surtout pour les moments de relâchement et d'humour. À Abdessamad NAIT OUHRA, pour nos discussions enrichissantes, et à Zeina JOUDIEH, pour ta gentillesse et les "Fox off" qui égayaient mes journées.

Merci à mes amis et collègues qui ont partagé ce voyage avec moi : Coffi GBEWADE, Ahmad MOSTAFA, Franck AMOIH, Xiaodong ZHANG, Nathan AMROFEL, Abdessamad NAIT OUHRA, Narges DASHTBESH, Nicolas CHABRAT, Du KO, Farah AL SAHYOUNI, et Bahaa ABOU CHAKRA. Votre présence a rendu ce voyage inoubliable. À Ahmad, nos "deep conversations" me manqueront. Maryse et Armelle, vous êtes devenues des grandes sœurs, et nos discussions matinales vont me manquer.

Enfin, je tiens à exprimer une reconnaissance éternelle envers mes amis et frères, au Togo et dans le monde, ainsi qu'à ma famille et mes neveux et nièces. Merci à Tonton Yark, Serge, Faika, pour avoir cru en moi dès le début. Merci à tous mes amis : LeYovaux, LeCoffi, Sani, Mireille, Renaud, Raoul, Wiyao, Couz, Carine, Lau, FSQ, Gnani, QFC, Ashao clan, la team TGB (Doof-Coco-Akira), la team Liban, Lau&Ga, Nini, les amis du SUAPS Nancy, et tant d'autres. Chaque moment passé avec vous, qu'il s'agisse de plaintes partagées, de paroles d'encouragement ou simplement de moments de décompression, a été un cadeau précieux. Vous avez tous joué un rôle essentiel, et je ne pourrai jamais vous remercier assez.

Je ne saurais conclure sans un merci spécial aux créateurs de vidéos de chats, qui ont été un remède précieux contre le stress et la fatigue.

Au-delà de l'expérience scientifique, cette thèse a été un voyage humain des plus riches. Ce périple n'aurait jamais été possible sans chacune des personnes que j'ai mentionnées ici, et bien d'autres encore. Vous avez tous contribué, à votre manière, à faire de cette aventure un souvenir inoubliable.

..... Merci du fond du cœur à chacun d'entre vous ♥ .

RESUME

L'excavation de galeries souterraines engendre en général une zone endommagée par des fractures. Dans le cadre du stockage des déchets radioactifs en couches argileuses profondes, ce réseau de fractures désature la roche hôte et lui fait perdre ses propriétés de confinement (très faible perméabilité, bonne résistance mécanique). Cette thèse se concentre sur l'argilite du Callovo-Oxfordien (COx), une formation géologique choisie en France (Bure, Meuse/Haute-Marne) pour son potentiel en tant que barrière de confinement des déchets radioactifs. En utilisant une approche expérimentale, l'impact de la propagation et de l'auto-colmatage des fissures sur la perméabilité à l'eau et au gaz de l'argilite du COx a été étudié. Des essais d'auto-colmatage ont été réalisés sur des éprouvettes cylindriques artificiellement fracturées sous tomographie aux rayons X, sous différentes orientations (parallèle et perpendiculaire au plan de litage) et températures, avec différentes teneurs en calcite, différentes largeurs d'ouverture de la fracture initiale, et avec l'injection de différents fluides tels que l'eau et le gaz. L'objectif étant de mieux comprendre l'impact de ces différents facteurs sur le processus d'auto-colmatage de l'argilite du COx (évolutions de la perméabilité et de la fermeture de la fracture). Par ailleurs, des essais de fracturation avec mesure de la perméabilité au gaz ont également été réalisés pour les deux orientations afin d'étudier l'impact de l'endommagement par microfissuration sur les propriétés hydrauliques de l'argilite du COx.

Il a été observé que la composition minéralogique de l'argilite joue un rôle déterminant dans l'efficacité de l'auto-colmatage. Une teneur élevée en calcite, associée à une faible teneur en argile, a été identifiée comme un facteur limitant, compromettant ainsi la capacité de la roche à se colmater de manière efficace. Pour garantir un colmatage efficace, il est nécessaire que la concentration en calcite reste en deçà de 40%. En général, le processus d'auto-colmatage est rapide au début du test puis se stabilise après un mois. La perméabilité à l'eau des échantillons est partiellement restaurée ($\sim 10^{-18}$ - 10^{-19} m²) par rapport à la perméabilité initiale de l'argilite saine (c'est-à-dire sans fracture) ($\sim 10^{-20}$ - 10^{-21} m²) et la fermeture de la fracture est quasi totale. Par ailleurs, le processus d'auto-colmatage semble être tout aussi efficace pour les orientations parallèles et perpendiculaires. L'impact de la température sur le processus d'auto-colmatage n'est pas importante. On a observé qu'un léger effet retard en début d'essais pour des températures élevées (80°C). En ce qui concerne l'injection simultanée de gaz inerte et d'eau, notre étude a mis en évidence un effet retardateur sur la réduction de la perméabilité à l'eau, principalement en raison de la désaturation induite par le gaz. Malgré ce retard, le processus d'auto-colmatage s'est avéré efficace, induisant une réduction significative de la perméabilité.

Les essais pilotes nous ont permis de comprendre qu'il est important de prêter attention à la procédure de resaturation des échantillons avant de les utiliser. Il en résulte qu'il est préférable de ne pas resaturer les éprouvettes. Les essais de fracturation (essais de compression triaxiale) ont montré que la perméabilité au gaz diminue progressivement pour les deux orientations avec l'augmentation de la contrainte déviatorique, illustrant la fermeture des fissures initiales due à la compression axiale des échantillons. Pour des contraintes déviatoriques plus élevées, une augmentation significative de la perméabilité au gaz est observée près du seuil de dilatance, en particulier dans les échantillons orientés parallèlement au plan de litage. Cela suggère un lien étroit entre l'ouverture des microfissures et l'augmentation de la perméabilité.

Mots-clés : Argilites, Perméabilité à l'eau, Perméabilité au gaz, Auto-colmatage, Endommagement, Anisotropie, Comportements THM, Déchets radioactifs.

ABSTRACT

The excavation of underground galleries generally results in a zone damaged by fractures. In the context of the storage of radioactive waste in deep clay layers, this network of fractures desaturates the host rock and causes it to lose its confinement properties (very low permeability, good mechanical strength). This thesis focuses on the Callovo-Oxfordian claystone (COx), a geological formation chosen in France (Bure, Meuse/Haute-Marne) for its potential as a containment barrier for radioactive waste. Using an experimental approach, the impact of crack propagation and self-sealing on the water and gas permeability of the COx claystone was studied. Self-sealing tests were carried out on cylindrical specimens artificially fractured under X-ray tomography, under different orientations (parallel and perpendicular to the bedding plane) and temperatures, with different calcite contents, different opening widths of the initial fracture, and with the injection of different fluids such as water and gas. The objective being to better understand the impact of these different factors on the self-sealing process of the COx claystone (changes in permeability and fracture closure). Furthermore, fracturing tests with measurement of gas permeability were also carried out for the two orientations in order to study the impact of microcracking damage on the hydraulic properties of the COx claystone.

It has been observed that the mineralogical composition of the claystone plays a determining role in the effectiveness of self-sealing. High calcite content, combined with low clay content, has been identified as a limiting factor, thereby compromising the rock's ability to self-seal effectively. To guarantee effective sealing, it is necessary that the calcite content remains below 40%. In general, the self-sealing process is rapid at the start of the test and then stabilizes after a month. The water permeability of the samples is partially restored ($\sim 10^{-18}$ - 10^{-19} m²) compared to the initial permeability of healthy claystone (i.e. without fracture) ($\sim 10^{-20}$ - 10^{-21} m²) and the closure of the fracture is almost complete. Furthermore, the self-sealing process appears to be equally effective for both parallel and perpendicular orientations. The impact of temperature on the self-sealing process was not significant. Only a slight delay effect was observed at the start of tests at high temperatures (80°C). Regarding the simultaneous injection of inert gas and water, our study demonstrated a retarding effect on the reduction of water permeability, mainly due to gas-induced desaturation. Despite this delay, the self-sealing process proved effective, inducing a significant reduction in permeability.

Pilot tests have shown us that it is important to pay attention to the procedure for resaturating samples before using them. As a result, it is preferable not to resaturate the specimens. The fracturing tests (triaxial compression tests) showed that the gas permeability gradually decreases for both orientations with increasing deviatoric stress, illustrating the closure of the initial cracks due to the axial compression of the samples. For higher deviatoric stresses, a significant increase in gas permeability is observed near the dilatancy threshold, particularly in samples oriented parallel to the bedding plane. This suggests a close link between the opening of microcracks and the increase in permeability.

Keywords: Claystones, Water permeability, Gas permeability, Self-sealing, Damage, Anisotropy, THM behaviors, Radioactive waste.

TABLE DES MATIERES

Remerciements.....	I
Résumé	II
Abstract.....	III
Table des matières.....	IV
Liste des tableaux	VII
Liste des figures	VIII
Introduction générale	1
CHAPITRE 1. : Contexte de l'étude	4
Introduction.....	5
1.1. Stockage profond de déchets radioactifs : contexte général	5
1.1.1. Les déchets radioactifs	5
1.1.2. Le stockage géologique profond	8
1.1.3. Le Projet EURAD	12
1.2. Les argiles : propriétés.....	16
1.2.1. Généralités sur les argiles.....	16
1.2.2. Le milieu poreux.....	18
1.2.3. L'argilite du Callovo-Oxfordien	20
1.2.4. L'argilite du COx dans le cadre du centre de stockage des déchets radioactifs.....	42
1.3. Dynamique du stockage profond	43
1.3.1. Température	43
1.3.2. Gaz	45
1.4. Objectif de la thèse	47
Conclusion.....	48
CHAPITRE 2. : Transfert en milieux poreux	49
Introduction.....	50
2.1. Lois d'écoulement : la perméation	50
2.1.1. Effet Klinkenberg.....	52
2.1.2. Effet de la saturation	52

2.1.3.	Détermination expérimentale	54
2.2.	Transfert au sein d'une phase.....	54
2.2.1.	Diffusion dans la phase liquide.....	54
2.2.2.	Diffusion dans la phase gazeuse.....	56
2.3.	Pression d'entrée et pression capillaire.....	57
2.3.1.	Notion	57
2.3.2.	Méthodes de caractérisation des pressions	59
2.4.	Transfert de gaz dans l'argilite du Callovo-Oxfordien	61
2.4.1.	Entrée du gaz dans l'argilite du Callovo-Oxfordien saturé	62
2.4.2.	Effet de l'environnement propre au stockage profond	64
	Conclusion.....	65
CHAPITRE 3.	: Auto-colmatage	66
	Introduction.....	67
3.1.	Préparation des échantillons.....	67
3.2.	Dispositif expérimental.....	69
3.3.	Protocole expérimental	70
3.4.	Mesure de perméabilité	73
3.5.	Tomographie 3D au rayon X : acquisition et analyse des données voxels	74
3.6.	Résultats et analyse	75
3.6.1.	Influence de l'orientation sur le processus d'auto-colmatage.....	75
3.6.2.	Influence du taux de carbonate sur le processus d'auto-colmatage	79
3.6.3.	Influence de l'ouverture de la fissure sur le processus d'auto-colmatage	83
3.6.4.	Influence de la température sur le processus d'auto-colmatage.....	87
3.6.5.	Influence de l'injection du gaz sur le processus d'auto-colmatage.....	96
3.7.	Discussion	99
3.7.1.	Influence de la teneur en calcite.....	99
3.7.2.	Influence de l'orientation de l'échantillon et de l'ouverture de la fissure	101
3.7.3.	Influence de la température.....	102
3.7.1.	Influence de l'injection du gaz	103
	Conclusion.....	105

CHAPITRE 4. : Compression triaxiale avec injection de gaz	108
Introduction.....	109
4.1. Préparation des échantillons.....	109
4.2. Dispositif expérimental.....	110
4.3. Protocole expérimental	111
4.3.1. Essais avec jauges de déformation.....	112
4.3.2. Essais sous tomographe.....	113
4.4. Mesure de perméabilité et Tomographie 3D au rayon X : acquisition et analyse des Voxels	114
4.5. Résultats et analyse	114
4.5.1. Essais avec jauges de déformation.....	115
4.5.2. Essais sous tomographe.....	123
4.6. Discussion	126
Conclusion.....	131
Conclusion et perspectives	132
Références bibliographiques.....	135

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1-1 : Bilan et évolution des volumes (m^3) de déchets déjà stockés ou destinés à être pris en charge par l'Andra (Andra, 2023).	7
Tableau 1-2: Catégories de déchets radioactifs et filières de gestion associés (Andra, 2023).	8
Tableau 1-3 : Classe des pores en fonction du diamètre (Coll, 2005).	19
Tableau 1-4 : Composition minéralogique pour un forage compris entre 489 et 508 mètres de profondeur (Gaucher <i>et al.</i> , 2004).	22
Tableau 1-5 : Composition de l'eau porale de la formation du Callovo-Oxfordien (Gaucher <i>et al.</i> , 2004).	23
Tableau 1-6 : Perméabilité intrinsèque à l'eau de l'argilite du Cox sous différents chargements (Escoffier, 2002).	25
Tableau 1-7 : Quelques caractéristiques mécanique de l'argilite du Cox (Mohajerani, 2011).	32
Tableau 1-8 : Paramètres poromécaniques (Mohajerani, 2011).	36
Tableau 1-9 : Exemples de tests URL dans lesquels des effets d'étanchéité ont été observés (Bock <i>et al.</i> , 2010).	38
Tableau 3-1 : Composition minéralogique de l'eau synthétique de l'Andra (Andra, 2015).	70
Tableau 3-2 : Paramètres utilisés au cours des essais d'auto-colmatage avec injection d'eau.	72
Tableau 3-3 : Paramètres utilisés au cours des essais d'auto-colmatage avec injection d'eau et de gaz.	73
Tableau 3-4 : Références des différents échantillons avec les caractéristiques et les conditions expérimentales correspondantes.	73
Tableau 3-5 : Viscosité dynamique de l'eau en fonction de la température.	74
Tableau 3-6 : Synthèse de mesures effectuées pour l'étude de l'influence de l'orientation.	79
Tableau 3-7 : Synthèse de mesures effectuées pour l'étude de l'influence du taux de carbonate.	82
Tableau 3-8 : Synthèse de mesures effectuées pour l'étude de l'influence de l'ouverture des fissures.	87
Tableau 3-9 : Synthèse de mesures effectuées pour l'étude de l'influence de la température sur l'orientation parallèle.	91
Tableau 3-10 : Synthèse de mesures effectuées pour l'étude de l'influence de la température sur l'orientation perpendiculaire.	96
Tableau 3-11 : Synthèse des mesures effectuées.	106
Tableau 4-1 : Références, caractéristiques et conditions expérimentales correspondantes des différents échantillons pour les essais avec jauges de déformation.	113
Tableau 4-2 : Références, caractéristiques et conditions expérimentales correspondantes des différents échantillons pour les essais sous tomographie.	114

LISTE DES FIGURES

Figure 1-1 : Colis de stockage de déchets radioactifs de haute activité (a) et moyenne activité à vie longue (b) (Andra, 2023).....	9
Figure 1-2 : Carte géologique de la région Meuse/Haute-Marne, dans l'est de la France, où se situe l'argile du Callovo-Oxfordien (Andra, 2005).	10
Figure 1-3: Architecture du projet de stockage Cigéo (https://www.cigeo.gouv.fr).	11
Figure 1-4: Illustration de l'alvéole de stockage destinée à accueillir les déchets de haute activité (HA) (Andra, 2005).	11
Figure 1-5: Image illustrant l'alvéole de stockage dédiée aux déchets de moyenne activité à vie longue (MAVL).....	12
Figure 1-6 : Structure minérale de base des argiles : la structure tétraédrique (a) et la structure octaédrique (b) (Didier, 2012).	17
Figure 1-7 : Familles de feuillets argileux (Didier, 2012).	17
Figure 1-8 : Schématisation d'un milieu poreux (Boulin, 2008).	18
Figure 1-9 : Représentation visuelle des différents type de pore : (A) couche d'argile minérale ou feuillet, (B) particule, (C) agrégat, (D) assemblage d'agrégats (Bergaya <i>et al.</i> , 2006).....	20
Figure 1-10 : Coupe géologique sur le site du laboratoire de Meuse/Haute-Marne (Andra, 2005).	21
Figure 1-11 : Perméabilité au gaz en fonction de la teneur en eau (Zhang et Rothfuchs, 2004).	26
Figure 1-12 : Changements de la perméabilité au gaz des échantillons de COx fracturés le long de différents chemins de recomptage (Zhang et Rothfuchs, 2008).	26
Figure 1-13 : (a) Courbes de contrainte déviatorique – déplacement axial (Armand <i>et al.</i> , 2013), et (b) critère de Hoek-Brown appliqué une à une campagne d'essais (Armand <i>et al.</i> , 2017).	29
Figure 1-14 : Courbes de contrainte-déformations des essais triaxiaux (Armand <i>et al.</i> , 2017).....	30
Figure 1-15 : Module de Young en fonction de la contrainte de chargement axiale (Zhang et Rothfuchs, 2004).....	32
Figure 1-16 : Effet d'échelle et anisotropie du module d'Young (Zhang & Rothfuchs, 2004).	33
Figure 1-17 : Représentation conceptuelle de l'EDZ (Andra, 2005).	37
Figure 1-18 : Essai d'auto-colmatage - UA / EST51023-5 (//) (CaCO ₃ = 29%) Evolution du volume de la fissure en fonction du temps d'injection (Ti : tomographie initiale, avant l'injection, Tf : tomographie finale, après l'arrêt de l'injection) (Giot <i>et al.</i> , 2019).	39
Figure 1-19 : Test d'auto-colmatage - UA / EST51023-5 (CaCO ₃ = 29%) Evolution de la perméabilité en fonction du temps d'injection (Giot <i>et al.</i> , 2019).	39
Figure 1-20 : Représentation schématique de la cellule de compression triaxiale (Auvray <i>et al.</i> , 2015).	40
Figure 1-21 : Evolution des fractures (vue latérale & sonde linéaire, en négatif) en fonction du débit d'injection et de l'orientation du plan d'anisotropie (Auvray <i>et al.</i> , 2015).	40
Figure 1-22 : (a) Perméabilité intrinsèque en fonction de la température de l'argile de Boom ; (b) conductivité hydraulique en fonction de la température de l'argile de Boom (Chen <i>et al.</i> , 2013).	42

Figure 1-23 : Évolution de la température dans une zone de dépôt de déchets de haute activité à vie courte, en coupe transversale et horizontalement (Andra, 2005).....	45
Figure 2-1 : Illustration de l'effet de la tortuosité (Didier, 2012).....	55
Figure 2-2 : Cellule de diffusion de Wicke-Kallenbach (a) et Graham (b). A et B : gaz, 1 : disque poreux, 2 : échantillon, 3 et 4 : compartiments aval et amont, 5 : vannes, 6 : chromatographe en phase gazeuse, 8 : débitmètre (Soukup <i>et al.</i> , 2008).	57
Figure 2-3 : illustration du phénomène de percée capillaire (Didier, 2012).	58
Figure 2-4 : Schéma descriptif de méthodes de mesure de pressions d'entrée (P : pression, V : accumulation d'eau, Q : débit) (Boulin <i>et al.</i> , 2011).	60
Figure 2-5 : Représentation schématique des différents mécanismes de migration des gaz dans les argilites du Callovo-Oxfordien (Andra, 2005).....	63
Figure 3-1 : Géométrie des fissures artificielles des échantillons cylindrique ($\varnothing = 20$ mm ; h = 40 mm) pour les essais d'auto-colmatage (Agboli <i>et al.</i> , 2023).....	68
Figure 3-2 : Echantillon d'argilite du COx coupé en deux avec une face usinée pour l'essai d'auto-colmatage.	68
Figure 3-3 : cellule de compression triaxiale en PEEK CF30.....	69
Figure 3-4 : Cellule de compression triaxiale en PEEK dans un nanotomographe à rayon X (Agboli <i>et al.</i> , 2023).....	69
Figure 3-5 : Pompes d'injection de fluides et dispositif d'acquisition.	70
Figure 3-6 : Schéma de la cellule triaxiale en PEEK avec l'échantillon de l'argilite du Cox à l'intérieur (Agboli <i>et al.</i> , 2023).	71
Figure 3-7 : Dispositif de chauffage.	72
Figure 3-8 : Représentation des vides et inclusions dans un matériaux.	75
Figure 3-9 : Évolution de la perméabilité à l'eau en amont de l'échantillon parallèle EST63744-7 et de l'échantillon perpendiculaire EST63744-11 pendant l'essai d'auto-colmatage à 20°C.	76
Figure 3-10 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST63744-11 montrant l'évolution du volume de la fissure avec le temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 20°C (Jour 0- : après la charge hydrostatique ; Jour 0+ : après la saturation de la fissure) (Agboli <i>et al.</i> , 2023).	76
Figure 3-11 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST63744-11 montrant l'évolution d'une coupe transversale et longitudinale de la fissure avec le temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 20°C (Jour 0- : après la charge hydrostatique).	77
Figure 3-12 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon parallèle EST63744-7 montrant l'évolution du volume de la fissure en fonction du temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 20°C (Jour 0- : après la charge hydrostatique ; Jour 0+ : après la saturation de la fissure) (Agboli <i>et al.</i> , 2023).....	77
Figure 3-13 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon parallèle EST63744-7 montrant	

l'évolution d'une coupe transversale et longitudinale de la fissure avec le temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 20°C (Jour 0- : après la charge hydrostatique). .	78
Figure 3-14 : Pourcentage de variation du volume de la fissure initiale (normalisé avec le volume après chargement hydrostatique) obtenu à partir des images 3D de tomographie à rayons X pendant les tests d'auto-colmatage à l'eau réalisés sur les échantillons parallèle EST66744-7 et perpendiculaire EST66744-11.....	78
Figure 3-15 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST59996-71 montrant l'évolution du volume de la fissure en fonction du temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 20°C (Jour 0- : après la charge hydrostatique ; Jour 0+ : après la saturation de la fissure) (Agboli <i>et al.</i> , 2023).....	80
Figure 3-16 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST59996-71 montrant l'évolution d'une coupe transversale et longitudinale de la fissure avec le temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 20°C (Jour 0- : après la charge hydrostatique).	80
Figure 3-17 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST60007-71 montrant l'évolution du volume de la fissure en fonction du temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 20°C (Jour 0 : après la charge hydrostatique) (Agboli <i>et al.</i> , 2023).	81
Figure 3-18 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST60007-71 montrant l'évolution d'une coupe transversale et longitudinale de la fissure avec le temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 20°C (Jour 0- : après la charge hydrostatique).	81
Figure 3-19 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST60018-71 montrant l'évolution du volume de la fissure en fonction du temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 20°C (Jour 0- : après chargement hydrostatique ; Jour 0+ : après saturation de la fissure) (Agboli <i>et al.</i> , 2023).	82
Figure 3-20 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST60018-71 montrant l'évolution d'une coupe transversale et longitudinale de la fissure avec le temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 20°C (Jour 0- : après la charge hydrostatique).	82
Figure 3-21 : Évolution de la perméabilité à l'eau en amont de l'échantillon parallèle EST60766-3 (ouverture = 0,4 mm) et de l'échantillon parallèle EST62690-2 (ouverture = 0,8mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 20°C (Agboli <i>et al.</i> , 2023).	84
Figure 3-22 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon parallèle EST60766-03 montrant l'évolution du volume de la fissure en fonction du temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 20°C (Jour 0- : après la charge hydrostatique ; Jour 0+ : après la saturation de la fissure) (Agboli <i>et al.</i> , 2023).	84
Figure 3-23 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon parallèle EST60766-03 montrant	

l'évolution d'une coupe transversale et longitudinale de la fissure avec le temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 20°C (Jour 0- : après la charge hydrostatique).	. 85
Figure 3-24 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon parallèle EST62690-02 montrant l'évolution du volume de la fissure en fonction du temps (ouverture initiale de la fissure = 0,8 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 20°C (Jour 0 : après la charge hydrostatique) (Agboli <i>et al.</i> , 2023).	85
Figure 3-25 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon parallèle EST62690-02 montrant l'évolution d'une coupe transversale et longitudinale de la fissure avec le temps (ouverture initiale de la fissure = 0,8 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 20°C (Jour 0- : après la charge hydrostatique).	. 86
Figure 3-26 : Pourcentage de variation du volume de la fissure initiale (normalisé avec le volume après chargement hydrostatique) obtenu à partir des images 3D de tomographie à rayons X pendant les tests d'auto-colmatage à l'eau réalisés sur les échantillons parallèle EST62690-02 et EST60766-03.	86
Figure 3-27 : Évolution de la perméabilité à l'eau lors des essais d'auto-colmatage sur l'échantillon parallèle EST66418-10 à 80°C et sur l'échantillon parallèle EST66727-05 à 40 °C, par rapport à l'échantillon parallèle EST60766-3 à 20°C.	88
Figure 3-28 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon parallèle EST66418-10 montrant l'évolution du volume de la fissure dans le temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) au cours d'un essai d'auto-colmatage à 80 °C (Jour 0- : après la charge hydrostatique ; Jour 0+ : après la saturation de la fissure) (Agboli <i>et al.</i> , 2023).	88
Figure 3-29 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon parallèle EST66418-10 montrant l'évolution d'une coupe transversale et longitudinale de la fissure avec le temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 80°C (Jour 0- : après la charge hydrostatique).	. 89
Figure 3-30 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon parallèle EST66727-05 montrant l'évolution du volume de la fissure dans le temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) au cours d'un essai d'auto-colmatage à 40 °C (Jour 0- : après la charge hydrostatique ; Jour 0+ : après la saturation de la fissure).	89
Figure 3-31 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon parallèle EST66727-05 montrant l'évolution d'une coupe transversale et longitudinale de la fissure avec le temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 40°C (Jour 0- : après la charge hydrostatique).	. 90
Figure 3-32 : Pourcentage de variation du volume de la fissure initiale (normalisé avec le volume après chargement hydrostatique) obtenu à partir des images 3D de tomographie à rayons X pendant les tests d'auto-colmatage à l'eau réalisés sur les échantillons parallèle EST60766-03, EST66727-05, et EST66418-10.	90
Figure 3-33 : Évolution de la perméabilité à l'eau lors des essais d'auto-colmatage sur l'échantillon perpendiculaire EST66703-13 à 80°C et sur l'échantillon perpendiculaire EST66703-12 à 40 °C, par rapport à l'échantillon perpendiculaire EST66697-18 à 20°C.	92
Figure 3-34 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST66703-13 montrant l'évolution du volume de la fissure dans le temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) au cours d'un essai d'auto-colmatage à 80 °C (Jour 0- : après chargement hydrostatique ; Jour 0+ : après	

saturation de la fissure).	92
Figure 3-35 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST66703-13 montrant l'évolution d'une coupe transversale et longitudinale de la fissure avec le temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 80°C (Jour 0- : après la charge hydrostatique).	93
Figure 3-36 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST66703-12 montrant l'évolution du volume de la fissure dans le temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) au cours d'un essai d'auto-colmatage à 40 °C (Jour 0- : après chargement hydrostatique ; Jour 0+ : après saturation de la fissure).	93
Figure 3-37 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST66703-12 montrant l'évolution d'une coupe transversale et longitudinale de la fissure avec le temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 40°C (Jour 0- : après la charge hydrostatique).	94
Figure 3-38 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST66697-18 montrant l'évolution du volume de la fissure dans le temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) au cours d'un essai d'auto-colmatage à 20 °C (Jour 0- : après chargement hydrostatique ; Jour 0+ : après saturation de la fissure).	94
Figure 3-39 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST66697-18 montrant l'évolution d'une coupe transversale et longitudinale de la fissure avec le temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 20°C (Jour 0- : après la charge hydrostatique).	95
Figure 3-40 : Pourcentage de variation du volume de la fissure initiale (normalisé avec le volume après chargement hydrostatique) obtenu à partir des images 3D de tomographie à rayons X pendant les tests d'auto-colmatage à l'eau réalisés sur les échantillons parallèle EST66697-18, EST66703-13, et EST66703-13.	95
Figure 3-41 : Évolution de la perméabilité à l'eau des fissures au cours de l'essai d'auto-colmatage à l'eau et au gaz sur l'échantillon parallèle EST66418-5.	97
Figure 3-42 : Évolution de la perméabilité à l'eau des fissures lors de l'essai d'auto-colmatage à l'eau et au gaz sur l'échantillon perpendiculaire EST66723-11.	97
Figure 3-43 : Évolution de la perméabilité à l'eau des fissures lors des essais d'auto-colmatage sur les échantillons EST60766-3 (parallèle), EST63744-7 (parallèle) et EST63744-11 (perpendiculaire).	97
Figure 3-44 : Image de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon parallèle EST66418-5 montrant le volume de la fissure à la fin de l'essai d'auto-colmatage à l'eau et au gaz.	98
Figure 3-45 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST66723-11 montrant l'évolution du volume de la fissure dans le temps au cours de l'essai d'auto-colmatage à l'eau et au gaz (Jour 0- : après chargement hydrostatique ; Jour 0+ : après saturation de la fissure).	98
Figure 3-46 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST66723-11 montrant l'évolution d'une coupe transversale et longitudinale de la fissure avec le temps (ouverture	

initiale de la fissure = 0,4 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à l'eau et au gaz à 20°C (Jour 0- : après la charge hydrostatique).....	99
Figure 3-47 : En haut : pourcentage de variation du volume de la fissure initiale (normalisé avec le volume après chargement hydrostatique) obtenu à partir des images 3D de tomographie à rayons X pendant tous les tests d'auto-colmatage à l'eau, pour les orientations parallèles (à gauche) et perpendiculaires (à droite). En bas : pourcentage de variation du volume de la fissure initiale à la fin du test en fonction de la teneur en calcite pour les deux orientations.	100
Figure 3-48 : Pourcentage de variation du volume de la fissure initiale (normalisé avec le volume après chargement hydrostatique) obtenu à partir des images 3D de tomographie à rayons X pendant d'auto-colmatage à l'eau et au gaz , pour l'orientations parallèle (EST66418-5) ; et la pression de gaz nécessaire pour la mesure de perméabilité au gaz.	105
Figure 3-49 : Pourcentage de variation du volume de la fissure initiale (normalisé avec le volume après chargement hydrostatique) obtenu à partir des images 3D de tomographie à rayons X pendant d'auto-colmatage à l'eau et au gaz , pour l'orientations perpendiculaire (EST66723-11) ; et la pression de gaz nécessaire pour la mesure de perméabilité au gaz.	105
Figure 4-1 : Echantillon cylindrique ($\varnothing = 20$ mm ; h = 40 mm) d'argilite du COx.....	109
Figure 4-2 : Jauges de déformation et système de coordonnées orientés par rapport au plan de litage de l'échantillon cylindrique d'argilite du COx (isotrope transverse) pour les deux orientations de l'échantillon (parallèle au plan de litage à gauche, perpendiculaire au plan de litage à droite).	110
Figure 4-3 : Cellule de compression triaxiale en acier.	111
Figure 4-4 : Courbes contrainte déviatorique -déformations d'un échantillon parallèle (EST 66423-06 //).	115
Figure 4-5 : Courbe contrainte déviatorique -déplacement axial d'un échantillon parallèle (EST 66423 - 06 //).	116
Figure 4-6 : Evolution de la perméabilité au gaz et de la contrainte déviatorique en fonction du temps d'un échantillon parallèle (EST 66423 - 06 //).	116
Figure 4-7 : Échantillon parallèle (EST66727-06//) après resaturation sous cloche sans confinement.	117
Figure 4-8 : Courbes contrainte déviatorique-déformations d'un échantillon parallèle (EST 66727-06 //).	117
Figure 4-9 : Courbe contrainte déviatorique -déplacement axial d'un échantillon parallèle (EST 66727 - 06 //).	118
Figure 4-10 : Evolution de la perméabilité au gaz et de la contrainte déviatorique en fonction du temps d'un échantillon parallèle (EST 66727 - 06 //).	118
Figure 4-11 : Évolution de la perméabilité au gaz et de la déformation volumique en fonction du temps d'un échantillon parallèle (EST 66727 - 01 //).	119
Figure 4-12 : Courbes contrainte déviatorique -déformations d'un échantillon parallèle (EST 66721 - 01 //).	120
Figure 4-13 : Courbe contrainte déviatorique -déplacement axial d'un échantillon parallèle (EST 66721 -	

01 //).....	120
Figure 4-14 : Evolution de la perméabilité au gaz et de la contrainte déviatorique en fonction du temps d'un échantillon parallèle (EST 66721 - 01 //).....	121
Figure 4-15 : Évolution de la perméabilité au gaz et de la déformation volumique en fonction du temps d'un échantillon parallèle (EST 66721 - 01 //).....	121
Figure 4-16 : Courbes contrainte déviatorique -déformations de l'échantillon perpendiculaire (EST 66721 - 18 ⊥).....	122
Figure 4-17 : Courbe contrainte déviatorique -déplacement axial de l'échantillon perpendiculaire (EST 66721 - 18 ⊥).....	122
Figure 4-18 : Evolution de la perméabilité au gaz et de la contrainte déviatorique en fonction du temps d'un échantillon perpendiculaire (EST 66721 - 18 ⊥).	123
Figure 4-19 : Évolution de la perméabilité au gaz et de la déformation volumique en fonction du temps d'un échantillon perpendiculaire (EST 66721 - 18 ⊥).	123
Figure 4-20 : Evolution du volume de gaz injecté et de la contrainte déviatorique en fonction du temps d'un échantillon perpendiculaire (EST66697-11 ⊥).	124
Figure 4-21 : Evolution de la perméabilité au gaz et de la contrainte déviatorique en fonction du temps d'un échantillon perpendiculaire (EST66697-11 ⊥).	124
Figure 4-22 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST66697-11 juste après le chargement hydrostatique montrant : des coupes suivant les plans 1-2 (en haut à gauche), 1-3 (en bas gauche), 2-3 (en haut gauche) et une vue 3D.	125
Figure 4-23 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST66697-11 juste après chargement déviatorique de 10 MPa montrant : des coupes suivant les plans 1-2 (en haut à gauche), 1-3 (en bas gauche), 2-3 (en haut gauche) et une vue 3D.....	125
Figure 4-24 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST66697-11 juste après chargement déviatorique de 20 MPa montrant : des coupes suivant les plans 1-2 (en haut à gauche), 1-3 (en bas gauche), 2-3 (en haut gauche) et une vue 3D.....	126
Figure 4-25 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST66697-11 juste après le chargement hydrostatique dans le plan 1-3 montrant une fissure suivant le plan de stratification.....	129
Figure 4-26 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST66697-11 juste après chargement déviatorique de 10 MPa dans le plan 1-3 montrant une fissure suivant le plan de stratification.....	129
Figure 4-27 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST66697-11 juste après chargement déviatorique de 10 MPa dans le plan 1-3 montrant une fissure suivant le plan de stratification.....	130
Figure 4-28 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST66697-11 juste après chargement déviatorique de 10 MPa (à gauche) et 20MPa (à droite) dans la vue en 3D	

montrant la bande visible suivant l'axe de compression. 130

INTRODUCTION GENERALE

La production d'énergie par l'industrie nucléaire génère une quantité non négligeable de déchets radioactifs présentant divers niveaux de radioactivité. Certains de ces déchets, pour diverses raisons, ne peuvent être réutilisés ou recyclés. La gestion de ces déchets jusqu'à leur fin de vie représente un défi considérable. La problématique des déchets à haute activité et à longue durée de vie représente un enjeu majeur à l'échelle internationale, incitant de nombreux pays à envisager des sites de stockage en couches géologiques profondes comme solution appropriée. Le principe fondamental du stockage en profondeur consiste à confiner ces substances dangereuses, en les isolant de toute interaction humaine, grâce à la mise en place de multiples barrières de protection. La première barrière est constituée par les colis contenant les déchets de moyenne et haute activité (MA-VL et HA), qui seront disposés dans des alvéoles en béton construites au sein d'une couche géologique.

Les similitudes entre différentes formations géologiques peuvent être exploitées afin de renforcer et d'accélérer les recherches sur les stockages profonds. Dans cette perspective, après des décennies de recherche, de développement et de soutien à la gestion et à l'élimination sûre des déchets radioactifs, et en s'appuyant sur les travaux préparatoires du récent projet de la Commission européenne JOPRAD (Joint Programming on Radioactive Waste Disposal), un programme conjoint européen sur la gestion des déchets radioactifs (EURAD) a été proposé. Ce programme vise à coordonner les activités sur les priorités convenues d'intérêt commun entre les organisations européennes de gestion des déchets, les organisations de soutien technique et les entités de recherche. Cependant, toutes les formations géologiques ne sont pas adaptées pour devenir des "roches hôtes" d'un centre de stockage profond de déchets nucléaires à haute activité. À l'échelle mondiale, trois catégories de roches privilégiées ont été identifiées : les argiles, les formations salines et les granites. Ces roches sont choisies pour leur capacité à maintenir les radionucléides confinés sur une longue période.

Dans l'optique de trouver une roche propice au stockage profond, la France mène depuis près de 30 ans des études sur une roche argileuse appelée l'argilite du Callovo-Oxfordien (COx). Cette couche géologique constitue la barrière finale envisagée par la France pour ce projet. Afin d'étudier en détail les propriétés de cette roche, un laboratoire souterrain a été établi par l'Agence Nationale pour la gestion des Déchets Radioactifs (Andra) sur le site, où différentes expériences *in situ* sont menées.

Au cours du stockage de déchets radioactifs, la roche argileuse sera soumise à plusieurs contraintes, telles que la température, le transfert de fluides, l'endommagement résultant des activités de creusement (Excavation Damaged Zone communément appelée EDZ), etc. Par exemple, après la fermeture du stockage, l'eau provenant de la formation géologique réinvestira l'environnement du stockage, en resaturant notamment les argilites qui bordent les alvéoles et les galeries, ainsi que les bétons de revêtement. La resaturation de l'argilite est susceptible de colmater les brèches se trouvant dans l'EDZ. Ce processus est l'auto-colmatage. Il confère à la roche la capacité de retrouver partiellement son état initial en réduisant l'impact négatif des fissures lorsque celle-ci est resaturée. Plusieurs recherches se sont penchées sur ce phénomène, confirmant son existence. Néanmoins, peu d'informations sont disponibles concernant le processus d'auto-colmatage en fonction de différentes températures et différents fluides.

Par ailleurs, l'augmentation de la pression du gaz, qui s'opère de manière progressive étant donné la lenteur de la production de gaz et la nécessité d'avoir une présence d'eau liquide en contact avec les surfaces métalliques pour amorcer les processus de corrosion (qui génère ces gaz), va induire sa migration à travers des matériaux complètement saturés. Ce processus est régi par un paramètre de transport crucial, à savoir

la pression d'entrée qui représente le seuil à partir duquel le gaz peut pénétrer un milieu poreux entièrement saturé, ainsi que par la présence de fractures dans l'EDZ. Il est donc important de comprendre l'effet de cette montée en pression du gaz sur la roche hôte afin de garantir la faisabilité du projet.

L'objectif de cette thèse est de comprendre le comportement de la roche face à ces contraintes à court et à long terme, revêtant ainsi une importance majeure dans le concept du stockage en profondeur. Pour atteindre ces objectifs, le processus d'auto-colmatage de l'argilite du COx sera étudié expérimentalement. Plus précisément, l'impact de la température, de la teneur en calcite, de l'orientation des échantillons, de la largeur initiale des fissures et de l'injection de gaz sur le phénomène d'auto-colmatage de fissures artificielles dans des éprouvettes cylindriques d'argilite du COx sera étudié. Ensuite, l'incidence de l'endommagement par microfissuration sur la circulation du gaz à travers la roche hôte sera expérimentalement étudiée pour différentes orientations. Ces approches permettront de mieux comprendre le processus d'auto-colmatage et d'appréhender le comportement du gaz au sein de la roche hôte en fonction de son orientation et des caractéristiques des fissures.

Le présent document présente les résultats de cette étude et se structure en deux parties distinctes, chacune abordant des aspects cruciaux de l'étude menée. La première partie se concentre sur le contexte de la recherche et est subdivisée en deux chapitres :

- Le chapitre 1 propose une vue d'ensemble approfondie du stockage profond des déchets radioactifs. Il débute par une présentation générale des principaux aspects liés au stockage géologique profond, puis une présentation des propriétés spécifiques des argiles, en mettant particulièrement l'accent sur l'argilite du Callovo-Oxfordien, une formation géologique largement étudiée dans le contexte des centres de stockage des déchets radioactifs en France. Enfin, il explore la dynamique du stockage profond et les différents paramètres qui influent sur ce processus, notamment la température et les gaz présents dans les environnements souterrains. Ce chapitre pose les bases nécessaires à la compréhension des travaux de recherche présentés dans ce rapport de thèse.
- Le chapitre 2 revisite les principales lois de transfert de gaz dans les milieux poreux. Il se concentre sur les processus de transfert au sein des milieux poreux, qui jouent un rôle crucial dans le comportement des argilites utilisées comme barrières géologiques.

La deuxième partie se focalisera sur les aspects expérimentaux de la thèse et est également subdivisée en deux chapitres :

- Le chapitre 3 examine l'impact de divers paramètres, tels que la température, la teneur en calcite, l'orientation des échantillons, la largeur initiale des fissures et l'injection de gaz, sur le phénomène d'auto-colmatage de fissures artificielles dans des éprouvettes cylindriques d'argilite du COx. Deux types d'essais d'auto-colmatage sont réalisés sur l'argilite du COx : le premier consiste en un test d'auto-colmatage avec injection d'eau à différentes températures et teneurs en calcite, en variant l'orientation des échantillons et l'ouverture initiale des fissures ; le second est un test d'auto-colmatage mixte avec injection combinée d'eau et de gaz. Des scans 3D aux rayons X sont effectués pendant les essais pour estimer l'évolution du volume des fissures à l'aide de logiciels spécialisés, tandis que la perméabilité à l'eau et au gaz est mesurée en continu tout au long des essais.
- Le chapitre 4 aborde l'étude de l'endommagement par microfissuration sur la circulation du gaz à travers la roche hôte. Des essais de compression triaxiale avec injection de gaz sont réalisés sur des échantillons équipés de jauges de déformation et sans jauges de déformations dans un nanotomographe, selon deux orientations différentes (parallèle et perpendiculaire au litage), en

utilisant de l'azote comme gaz inerte. La perméabilité au gaz sera mesurée en continu tout au long de ces essais.

La conclusion générale dresse un bilan des principaux résultats obtenus au cours de ce travail, suivi de perspectives de recherche visant à améliorer la compréhension du processus d'auto-colmatage et à mieux appréhender le comportement du gaz au sein de la roche hôte.

CHAPITRE 1. : CONTEXTE DE L'ETUDE

Introduction

Ce chapitre propose une vue d'ensemble approfondie du stockage profond des déchets radioactifs, un domaine important dans le cadre de la gestion sûre et efficace des déchets nucléaires, et sera divisé en 3 parties.

Dans la première partie, une généralité sur les principaux aspects liés au stockage géologique profond sera présentée. Ensuite, une définition du concept de déchets radioactifs, suivi d'une présentation du concept de stockage géologique profond, en mettant en évidence les enjeux et les défis associés à cette méthode de gestion des déchets. Finalement, une présentation détaillée du Projet EURAD (European Joint Programme on Radioactive Waste Management), l'effort européen visant à améliorer la compréhension et la gestion des déchets radioactifs.

La seconde partie présentera les propriétés générales des argiles avec un accent particulier sur l'argilite du Callovo-Oxfordien, une formation géologique largement étudiée dans le contexte des centres de stockage des déchets radioactifs.

Enfin la dernière partie détaillera la dynamique du stockage profond et les différents paramètres influençant le stockage (la température et les gaz présents dans les environnements souterrains).

Ce chapitre servira de fondation essentielle pour la compréhension des travaux de recherche présentés dans ce rapport de thèse.

1.1. Stockage profond de déchets radioactifs : contexte général

1.1.1. Les déchets radioactifs

L'utilisation des propriétés de la radioactivité entraîne la production de déchets radioactifs qui, pour certaines raisons, ne peuvent pas être réutilisés ou recyclés. La production de déchets radioactifs provient de divers secteurs, tels que l'industrie électronucléaire (60,9%), l'industrie non électronucléaire (3,3%), la recherche (26,6%), la défense (8,7%) et la médecine (0,5%) et (Andra, 2023). Ils émettent des rayonnements en raison de leur caractère radioactif, ce qui présente un risque pour la santé humaine et l'environnement. Par conséquent, ils ne peuvent pas être gérés de la même manière que les déchets conventionnels et nécessitent une prise en charge spécifique.

Selon les directives de l'Agence Internationale de l'Énergie Atomique (AIEA), un déchet radioactif est défini comme toute substance qui n'est pas destinée à une utilisation future et qui contient des radionucléides à des concentrations dépassant les seuils considérés comme acceptables par les autorités compétentes pour les matériaux utilisés sans contrôle.

1.1.1.1 Classification

Afin d'assurer une gestion adaptée et sécurisée des déchets, ces derniers sont regroupés en catégories selon leurs caractéristiques communes. En France, cette classification repose principalement sur deux paramètres qui confèrent leur appellation aux déchets. Ces paramètres sont : le niveau d'activité, et la période radioactive.

L'activité d'une matière radioactive représente le nombre de désintégrations par seconde qui se produisent à l'intérieur de celle-ci. Elle est mesurée en Becquerel (Bq), défini par une désintégration par

seconde. Cette activité génère des rayonnements (α , β , γ) d'intensité variable qui peuvent présenter un danger pour les organismes vivants. Il existe quatre classes d'activité (Andra, 2023):

- Très faible activité (TFA), lorsque l'activité est inférieure à 100 Bq/g
- Faible activité (FA), pour une activité comprise entre 10^2 et 10^6 Bq/g
- Moyenne activité (MA), de l'ordre de 10^6 - 10^9 Bq/g
- Haute activité (HA), lorsque l'activité est supérieure à 10^9 Bq/g

La période radioactive, également connue sous le nom de demi-vie ($T_{1/2}$), est définie comme la durée après laquelle l'activité initiale d'un isotope est réduite de moitié. Selon les données de l'Andra (2023), on distingue :

- Les déchets qualifiés de "vie très courte" (VTC) renferment des radionucléides dont la période radioactive est inférieure à 100 jours.
- Les déchets dits "à vie courte" (VC) tirent leur radioactivité principalement des radionucléides dont la période est inférieure ou égale à 31 ans.
- Les déchets dits "à vie longue" (VL) contiennent une quantité significative de radionucléides dont la période radioactive dépasse les 31 ans.

En se basant sur ces deux critères, l'Andra regroupe les déchets en cinq catégories(Andra, 2009) :

- Les déchets de très faible activité (TFA)
- Les déchets de faible et moyenne activité à vie courte (FMA-VC)
- Les déchets de faible activité à vie longue (FA-VL)
- Les déchets de moyenne activité à vie longue (MA-VL)
- Les déchets de haute activité (HA)

Les déchets de très faible activité (TFA) proviennent principalement des opérations de fonctionnement, de maintenance et de démantèlement des centrales nucléaires, des installations du cycle du combustible ainsi que des centres de recherche. Ces déchets se présentent généralement sous forme de matériaux inertes tels que du béton, des gravats, des terres, ainsi que des déchets métalliques ou plastiques.

Les déchets de faible et moyenne activité à vie courte (FMA-VC) sont principalement générés par les activités opérationnelles (telles que le traitement des effluents liquides ou la filtration des effluents gazeux), la maintenance (comprenant les vêtements, les outils, les gants, les filtres, etc.) ainsi que le démantèlement des centrales nucléaires, des installations du cycle du combustible et des centres de recherche. Une petite proportion de ces déchets provient également de la recherche médicale.

Selon l'Andra (2023), les déchets de faible activité à vie longue (FA-VL) comprennent divers types de déchets. Il s'agit tout d'abord des déchets de graphite provenant des activités de fonctionnement et de démantèlement des premières centrales nucléaires. On y trouve également des déchets radifères contenant du radium, principalement issus d'activités industrielles non liées à l'énergie nucléaire, telles que l'extraction des terres rares. Par ailleurs, d'autres types de déchets sont présents, tels que certains colis de déchets anciens conditionnés dans du bitume, des résidus de traitement de conversion de l'uranium provenant de l'usine d'Orano située à Malvési, ainsi que des déchets d'exploitation de l'usine de retraitement de La Hague.

Quant aux déchets de moyenne activité à vie longue (MA-VL), ils sont principalement constitués de déchets provenant des structures métalliques entourant les combustibles, tels que les coques et les embouts, qui sont issus du retraitement du combustible usé. On y retrouve également une proportion moindre de déchets technologiques liés à l'utilisation et à la maintenance des installations nucléaires, ainsi que des déchets provenant du traitement des effluents liquides, comme les boues bitumées, et des déchets activés ayant séjourné dans les réacteurs nucléaires.

Finalement, en ce qui concerne les déchets de haute activité (HA), ils proviennent principalement du processus de retraitement du combustible usé après son utilisation dans un réacteur nucléaire. Il s'agit de résidus hautement radioactifs résultant de la dissolution chimique des combustibles usés. Ces déchets sont ensuite incorporés dans du verre et conditionnés dans des conteneurs en acier inoxydable.

1.1.1.2 Gestion des déchets en France

Dans le dessein de confiner les déchets radioactifs et de les préserver de toute interaction avec l'homme et l'environnement, la France a opté pour une gestion spécifique de ces déchets, après une éventuelle phase d'entreposage, au sein de dispositifs de stockage adaptés à leur niveau de radioactivité et à leur durée de vie. Le Tableau 1-1 présente un aperçu de l'état actuel et de l'évolution des volumes de déchets français déjà stockés ou qui seront pris en charge par l'Andra.

Tableau 1-1 : Bilan et évolution des volumes (m³) de déchets déjà stockés ou destinés à être pris en charge par l'Andra (Andra, 2023).

Catégorie	Stock à fin 2021	Evolution 2021/2020
HA	4320	+130
MA-VL	39 500	-3 400
FA-VL	103 000	+9 200
FMA-VC	981 000	+10 000
TFA	633 000	+47 000

De manière générale, on distingue 3 types de stockage (Andra, 2023) :

- Le stockage en surface : Deux centres situés dans le département de l'Aube et exploités par l'Andra permettent le stockage des déchets de très faible activité (TFA) depuis 2003, ainsi que des déchets de faible et moyenne activité, principalement à courte durée de vie (FMA-VC) depuis 1992. À cela s'ajoute le Centre de stockage de la Manche, en exploitation de 1969 à 1994, qui se trouve actuellement en phase de fermeture.
- Le stockage à faible profondeur, actuellement à l'étude, vise à accueillir les déchets de faible activité à longue durée de vie (FA-VL).
- Le projet Cigéo, qui représente un stockage géologique profond, est conçu pour accueillir les déchets de haute activité (HA) ainsi que les déchets de moyenne activité à longue durée de vie (MA-VL).

Le Tableau 1-2 présente de manière synthétique la classification des déchets radioactifs en fonction de leur mode de gestion.

Tableau 1-2: Catégories de déchets radioactifs et filières de gestion associés (Andra, 2023).

Période radioactive* Activité**	Vie très courte (VTC) (période < 100 jours)	Principalement vie courte (VC) (période ≤ 31 ans)	Principalement vie longue (VL) (période > 31 ans)
Très faible activité (TFA) < 100 Bq/g	 Gestion par décroissance radioactive	 Stockage de surface (Centre industriel de regroupement, d'entreposage et de stockage)	
Faible activité (FA) entre quelques centaines de Bq/g et un million de Bq/g		 Stockage de surface (centres de stockage de l'Aube et de la Manche)	 Stockage à faible profondeur à l'étude
Moyenne activité (MA) de l'ordre d'un million à un milliard de Bq/g			 Stockage géologique profond en projet (projet Cigéo)
Haute activité (HA) de l'ordre de plusieurs milliards de Bq/g	Non applicable	 Stockage géologique profond en projet (projet Cigéo)	

1.1.2. Le stockage géologique profond

1.1.2.1 Principe

Le principe fondamental du stockage profond consiste à confiner les substances dangereuses, en les isolant de toute interaction humaine, grâce à la mise en place de multiples barrières de protection. Le principe des multi-barrières repose sur la mise en place d'une séquence d'ouvrages de confinement entre les déchets radioactifs et la biosphère, dans le but de garantir leur isolation. La première barrière est constituée par les colis contenant les déchets de moyenne et haute activité (MA-VL et HA), qui sont potentiellement destinés à un stockage géologique. Les déchets de haute activité sont incorporés dans une matrice vitrifiée, offrant une capacité de confinement particulièrement élevée et durable dans un environnement physico-chimique stable. Par la suite, le verre est coulé dans des fûts en acier inoxydable pour former un colis (Figure 1-1(a)). Quant aux déchets de moyenne activité à longue durée de vie, ils sont confinés dans du bitume, du béton, ou bien compactés avant d'être placés dans des fûts en béton ou en acier (Figure 1-1(b)). Ces colis de déchets représentent la première barrière de protection et sont représentés ci-dessous.

Une brèche dans les fûts, qu'elle soit due à la corrosion ou à la fissuration de l'enveloppe, pourrait entraîner la dispersion de radionucléides dans l'environnement proche. Si l'intégrité de l'une des barrières venait à être compromise, il serait nécessaire de mettre en place un ensemble de barrières physiques afin de prévenir toute migration de ces éléments dans la biosphère. Dans cette optique, les colis seront disposés dans des alvéoles en béton construites au sein d'une couche géologique (Landais, 2006).

Il convient de souligner que toutes les formations géologiques ne sont pas adaptées pour devenir des "roches hôtes" d'un centre de stockage profond de déchets nucléaires à haute activité. À l'échelle mondiale, trois catégories de roches privilégiées ont été identifiées (Boulin, 2008) : les argiles, les formations salines et les granites. Ces roches sont choisies pour leur capacité à maintenir les radionucléides confinés sur une longue période.

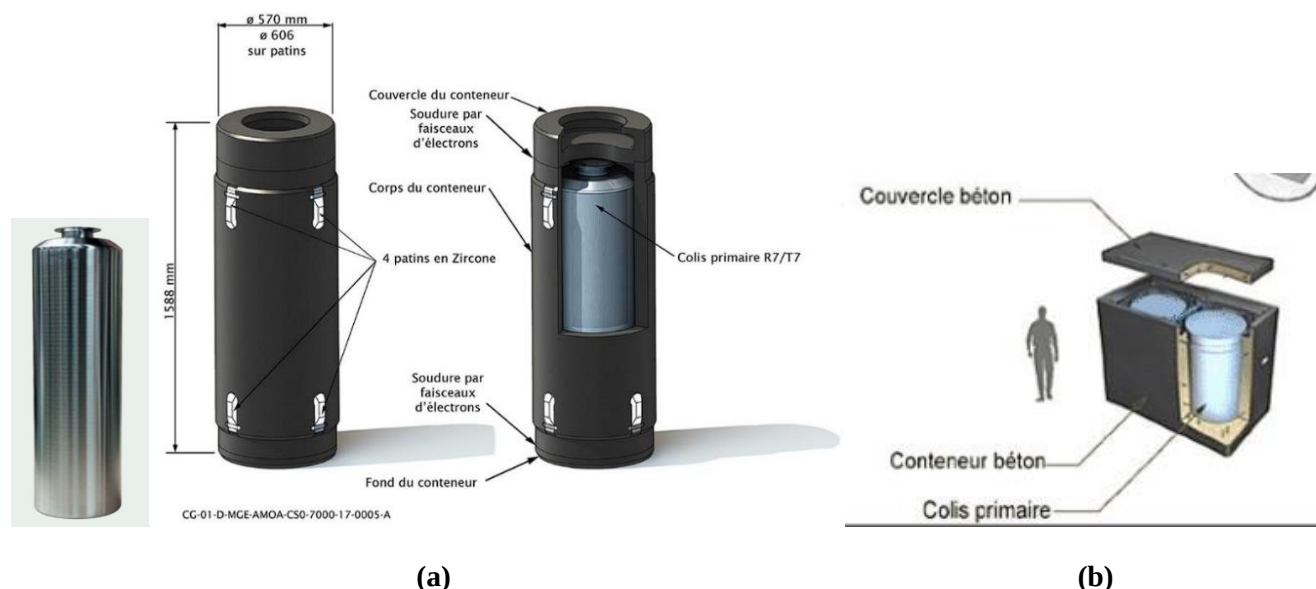


Figure 1-1 : Colis de stockage de déchets radioactifs de haute activité (a) et moyenne activité à vie longue (b) (Andra, 2023).

Dans l'optique de trouver une roche propice au stockage profond, plusieurs pays se sont lancés dans des études de roche. La France de son côté, mène depuis plus de 20 ans des études sur l'argilite du Callovo-Oxfordien (COx) dans un laboratoire souterrain piloté par l'Andra. Dans d'autres pays, d'autres organismes, tels que l'Organisme national des déchets radioactifs et des matières fissiles enrichies (ONDRAF) en Belgique, étudient également la possibilité de stockage profond dans l'argile de Boom. Chacun est confronté aux mêmes défis de faisabilité de ces installations, ainsi qu'à l'évaluation des risques liés au conditionnement, comme la création de fissures dans l'EDZ (Excavation Damaged Zone), qui est un sujet d'intérêt majeur dans cette thèse. La Suisse de son côté n'a pas encore déterminé le type de roche pour son site de stockage, mais elle dispose d'un laboratoire à Mont Terri où elle étudie l'argile à Opalinus. Les formations géologiques autres que les argiles sont également étudiées par l'Espagne (ENRESA), la Suède (SBK à Äspö), l'Allemagne, et bien d'autres pays en vue d'un possible stockage des déchets radioactifs en couche géologique profonde.

1.1.2.2 Le Concept Andra

Dans le cadre du stockage envisagé par l'Andra, la couche géologique sélectionnée correspond à une roche argileuse appelée argilite du Callovo-Oxfordien, datant de 155 millions d'années. Cette formation argileuse est localisée à une profondeur de 400 à 600 mètres dans la région de Bure, en Meuse/Haute Marne, à l'est de la France. La Figure 1-2 présente la carte géologique de la région Meuse/Haute-Marne, où se situe l'argile du Callovo-Oxfordien. Cette couche géologique constitue la barrière finale choisie par la France pour ce projet.

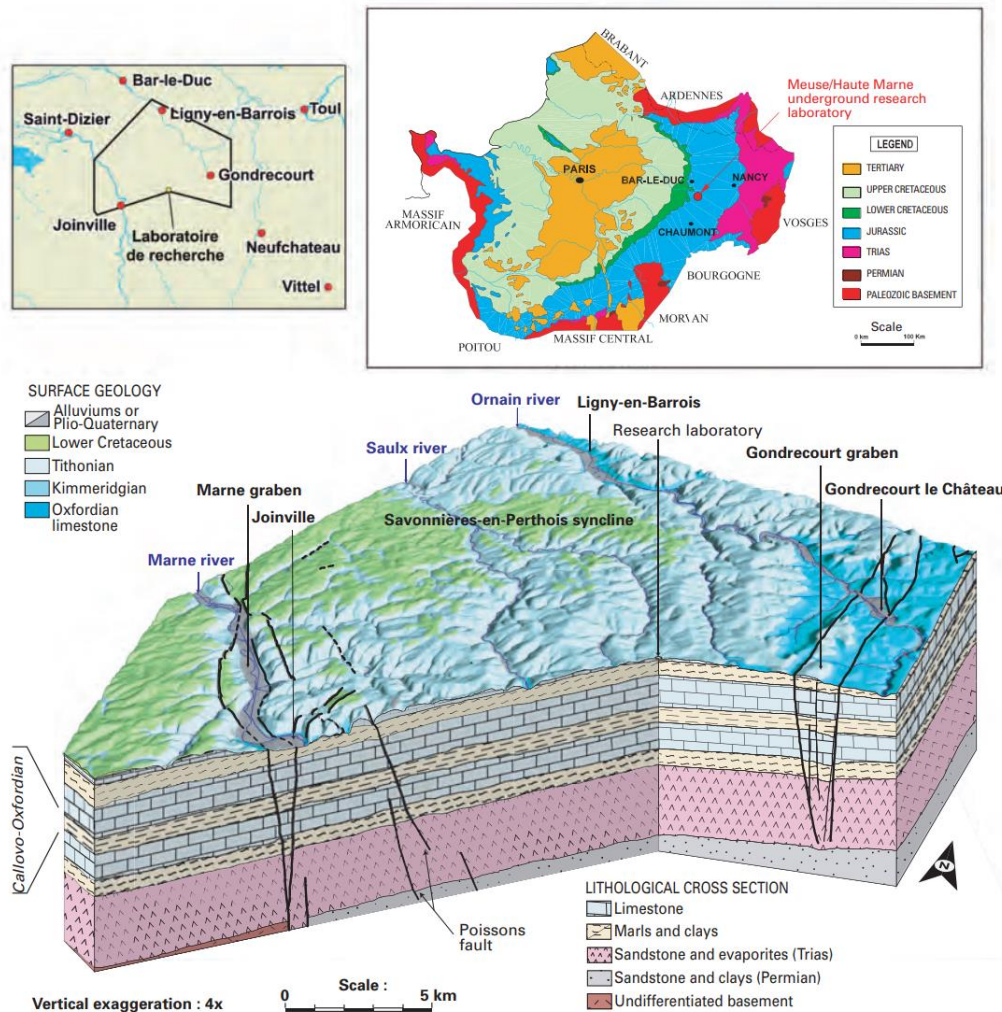


Figure 1-2 : Carte géologique de la région Meuse/Haute-Marne, dans l'est de la France, où se situe l'argile du Callovo-Oxfordien (Andra, 2005).

Afin d'étudier en détail les propriétés de cette roche, un laboratoire souterrain URL (Underground. Research laboratory, laboratoire de recherche souterrain) a été établi sur le site, où différentes expériences in situ sont menées. Des expériences visant à caractériser les propriétés thermo-hydromécaniques de l'argilite, de diffusion et de rétention des radionucléides, ainsi que des essais de caractérisation de l'argilite, sont en cours depuis le troisième trimestre de 2005. Les échantillons utilisés dans le cadre de cette thèse sont directement prélevés sur le site.

Concernant le schéma de stockage envisagé par l'Andra, le principe architectural est illustré dans la Figure 1-3. Des alvéoles, qui sont des cavités cylindriques creusées dans la roche, seront aménagées pour accueillir les déchets. Ces cavités seront connectées par des passages souterrains (illustrés dans la Figure 1-3) et des puits d'accès, facilitant ainsi la communication entre ces passages et la surface. Les alvéoles seront disposées horizontalement sur un seul niveau, afin de limiter l'expansion verticale du stockage.

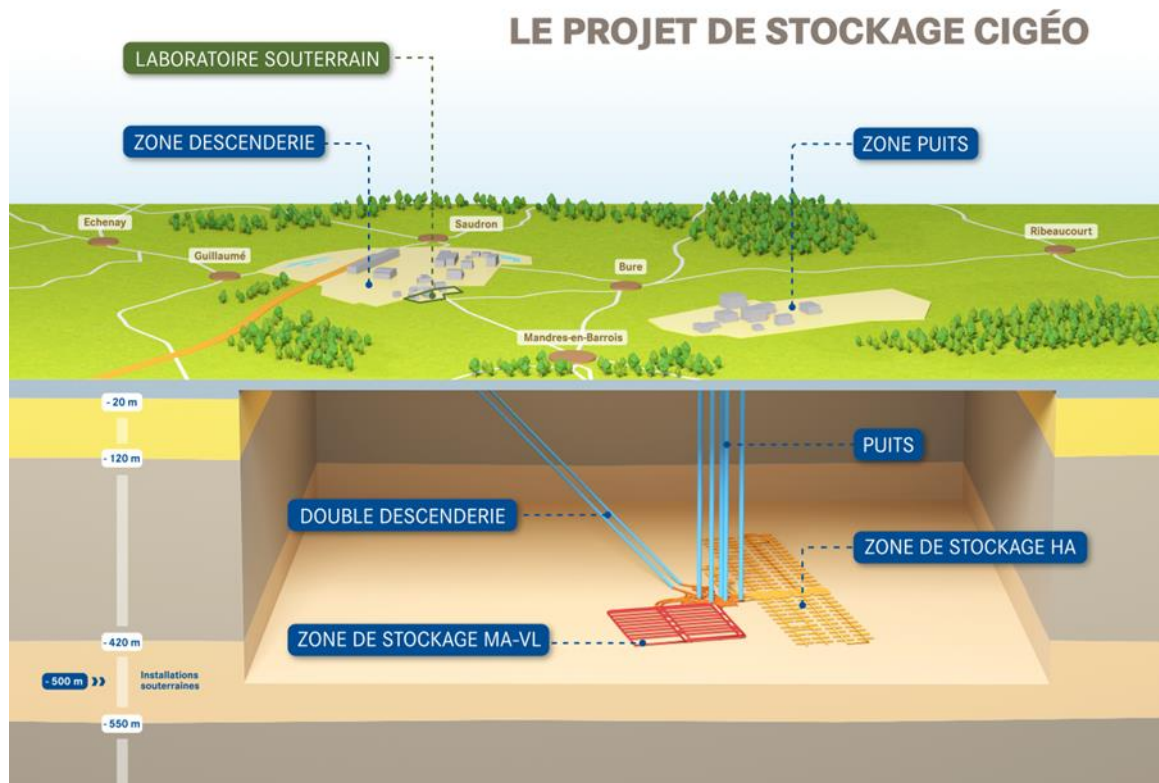


Figure 1-3: Architecture du projet de stockage Cigéo (<https://www.cigeo.gouv.fr>).

Les déchets de haute activité (HA), en raison de leur plus grande radioactivité et chaleur dégagée, seront disposés à une distance significative les uns des autres (Figure 1-4), contrairement aux déchets de moyenne activité à vie longue (MAVL) qui seront regroupés par groupes de quatre dans des surconteneurs en béton (Figure 1-5). En surface, des installations seront dédiées à l'accueil et au conditionnement des colis. Selon les estimations actuelles, le site de stockage sera composé d'environ dix lignes, espacées de 50 mètres chacune. Chaque ligne aura une longueur de 3240 mètres, et perpendiculairement à ces lignes seront disposées les alvéoles de stockage. Ainsi, la superficie totale du site devrait atteindre environ 1,6 km² (Andra, 2005).

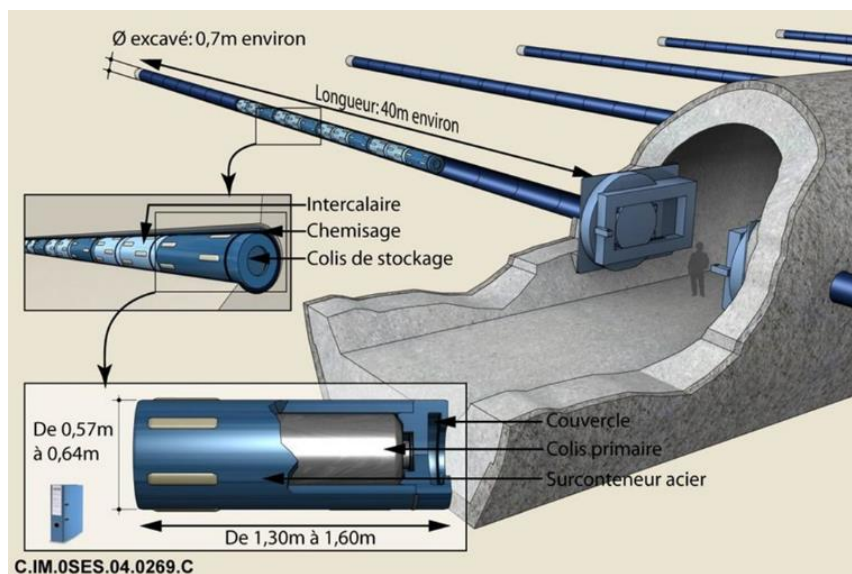


Figure 1-4: Illustration de l'alvéole de stockage destinée à accueillir les déchets de haute activité (HA) (Andra, 2005).

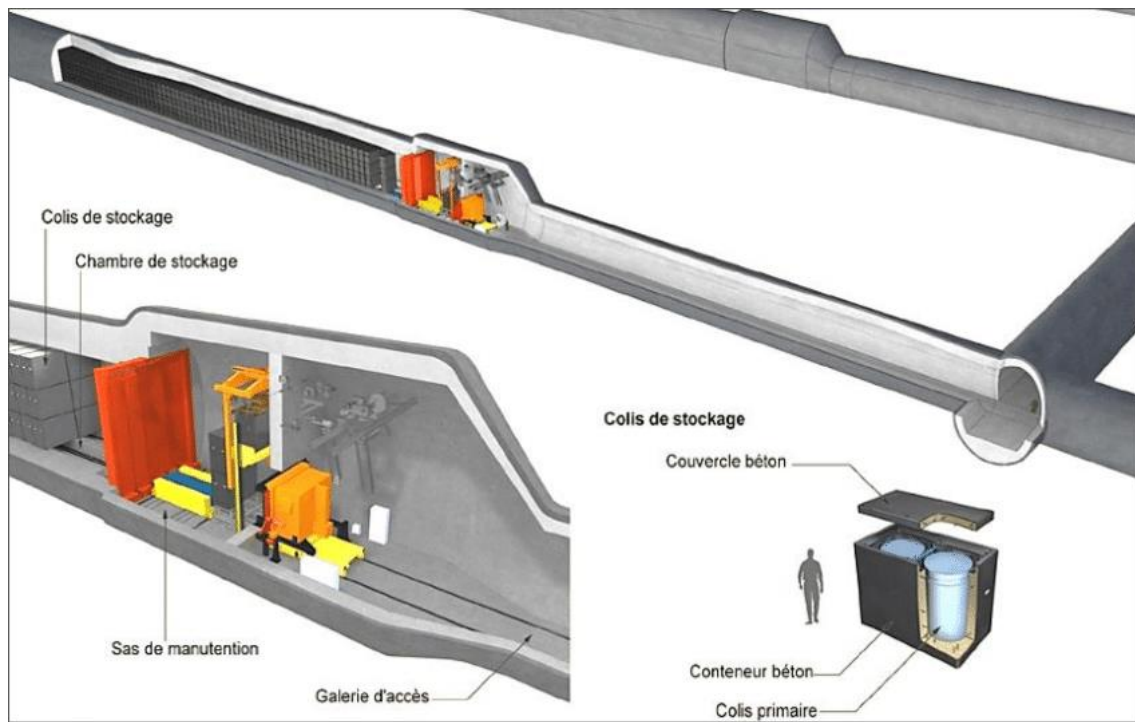


Figure 1-5: Image illustrant l'alvéole de stockage dédiée aux déchets de moyenne activité à vie longue (MAVL) (Sanchez, 2018).

Cette installation a pour objectif de garantir, à l'échelle de longues périodes de temps, que les radionucléides soient profondément retenus par le système à multi-barrières, de manière passive, c'est-à-dire sans nécessiter de maintenance ou de surveillance à très long terme. Le processus se déroulera en trois phases distinctes : une phase préparatoire à l'accueil des colis, une phase d'exploitation, et une phase postérieure à la fermeture. Cette dernière phase s'étend sur une période extrêmement longue et entre directement dans le cadre de la problématique de cette thèse.

Pendant cette période, aucune intervention humaine n'est envisageable, alors que le comportement des barrières de protection devient de moins en moins prévisible. Il est impératif de préserver le contrôle des conditions environnementales locales sur une durée prolongée, de manière à maintenir une connaissance et une prévisibilité des propriétés et des comportements des matériaux. Dans notre cas, il est primordial que la barrière finale conserve son intégrité aussi longtemps que possible. Les conditions de stockage engendrent un nouvel environnement susceptible d'entraîner des altérations locales dans les argilites et leurs caractéristiques. Il est essentiel que ces modifications n'affectent en aucune manière la sécurité de l'installation.

1.1.3. *Le Projet EURAD*

La problématique des déchets à haute activité et à vie longue représente un défi d'envergure internationale, incitant de nombreux pays à envisager des sites de stockage en couches géologiques profondes comme solution adéquate. Les similarités entre les différentes formations géologiques peuvent être exploitées afin de renforcer et d'accélérer les recherches sur les stockages profonds.

Dans cette perspective, après des décennies de recherche, de développement et de soutien à la gestion et à l'élimination sûre des déchets radioactifs, et en s'appuyant sur les travaux préparatoires du récent projet de la Commission européenne JOPRAD (Joint Programming on Radioactive Waste Disposal), un programme conjoint européen sur la gestion des déchets radioactifs (EURAD) a été proposé. Ce

programme vise à coordonner les activités sur les priorités convenues d'intérêt commun entre les organisations européennes de gestion des déchets (WMOs), les organisations de soutien technique (TSOs) et les entités de recherche (REs). Cette coordination complète les programmes nationaux de recherche, développement et démonstration, en établissant et en mettant en œuvre conjointement des activités présentant une valeur ajoutée au niveau européen. Il s'inscrit dans la continuité de la collaboration renforcée entre les acteurs européens dans le domaine de la gestion des déchets radioactifs (RWM). Il s'appuie sur les réseaux existants et émergents d'acteurs européens (réseau IGD-TP, SITEX et ER), et fait suite aux actions de coordination et de soutien antérieures (notamment SecIGD2, projet SITEX-II et JOPRAD). Le programme conjoint vise à générer et à gérer des connaissances pour soutenir les États membres de l'Union européenne dans la mise en œuvre de la directive 2011/70/Euratom (directive sur les déchets), en tenant compte des différences d'envergure et de stade d'avancement des programmes nationaux des États membres. Cela comprend notamment :

- Soutenir les États membres dans le développement et la mise en œuvre de leurs programmes nationaux de recherche, développement et démonstration pour une gestion sûre à long terme de leur gamme complète de différents types de déchets radioactifs, en participant au programme conjoint RWM.
- Consolider les connaissances existantes en vue de l'exploitation sécurisée des premiers sites de stockage géologique pour les combustibles usés, les déchets de haute activité et autres déchets radioactifs à vie longue, et accompagner l'optimisation liée à la mise en œuvre progressive du stockage géologique.
- Améliorer la gestion et le transfert des connaissances entre les organisations, les États membres et les générations futures.

Afin de répondre à ces objectifs généraux, le projet EURAD a divisé ses missions en plusieurs domaines d'activité regroupant différents Work Packages (WP). Il existe au total 13 WP et nos travaux présentés dans cette thèse s'inscrivent dans le cadre des WP suivants :

- WP6 : Mechanistic understanding of gas transport in clay materials (GAS),
- WP7 : Influence of temperature on clay-based material behaviour (HITEC).

1.1.3.1 WP6 (GAS)

L'objectif de ce WP est d'approfondir la compréhension mécanistique des mécanismes de transport de gaz au sein des matériaux argileux, tant naturels qu'artificiels. De plus, il vise à analyser les différents régimes de transport de gaz qui peuvent jouer un rôle à l'échelle d'un système de stockage géologique, ainsi que leur éventuelle influence sur l'intégrité de la barrière et les performances globales du dépôt. Ce WP est subdivisé en quatre tâches (task) distinctes :

- Task 1 : S/T coordination, State-of-the-art and training material
- Task 2 : Transport mechanisms
- Task 3 : Barrier integrity
- Task 4 : Repository performance aspects

La phase de recherche à laquelle une partie des travaux de cette thèse est consacrée concerne la task 3. L'objectif primordial de cette tâche réside dans l'acquisition d'une compréhension mécanistique approfondie des phénomènes et des processus hydromécaniques associés aux aspects suivants :

- La rupture provoquée par l'action du gaz sur les barrières argileuses, englobant aussi bien le système de barrières techniques que la zone d'endommagement mécanique (EDZ) ainsi que la matrice rocheuse argileuse de l'accueil géologique,
- L'efficacité des mécanismes d'auto-colmatage opérant le long des voies engendrées par la présence du gaz au sein des barrières d'argile d'un site de stockage géologique.

Cela étant établi, une seconde phase de l'objectif consiste à évaluer les résultats obtenus grâce à des analyses de données basées sur des modèles. Un accent particulier est mis sur la mise en œuvre d'une modélisation prédictive, ainsi que sur l'application d'un nouvel outil de modélisation aux expériences in situ, récemment élaboré.

La tâche 3 comprend 3 sous-tâches (subtask) :

- Subtask 3.1 : Gas-induced impacts on barrier integrity
- Subtask 3.2 : Pathway closure and sealing processes
- Subtask 3.3 : Model-based interpretation and synthesis of results.

Les expériences de laboratoire menées dans le cadre de la sous-tâche 3.1 ont pour but d'examiner les répercussions de l'accumulation de gaz et de l'augmentation de la pression gazeuse sur la performance du système de multi-barrières d'un dépôt en couches géologiques profondes. Parallèlement, les expériences réalisées au sein de la sous-tâche 3.2 ont pour finalité de mettre à l'épreuve la capacité d'auto-colmatage des barrières d'argile, en tenant compte des conditions thermo-hydro-mécaniques (THM) prévalant dans un dépôt en couches géologiques profondes. L'attention est particulièrement portée sur les fonctions de sécurité attribuées aux matériaux des barrières, à savoir l'isolation et le confinement mécanique des déchets ainsi que la rétention et la libération différée des radionucléides, une fois que l'injection de gaz a été stoppée. Quant à la sous-tâche 3.3, elle se concentre sur divers objectifs de modélisation. Les analyses de données et les interprétations des résultats expérimentaux obtenus dans la sous-tâche 3.1 et la sous-tâche 3.2 fourniront la base scientifique pour les interprétations basées sur le modèle. Cette phase vise à élargir les capacités du modèle afin de permettre l'interprétation des processus d'endommagement et de restauration dans un cadre mécanique unifié. Enfin, il est impératif que la plateforme de modélisation soit suffisamment adaptable pour investiguer aussi bien une variété de systèmes de barrières complexes (tels que les bentonites et les mélanges) que des formations rocheuses ayant une teneur élevée en argile (telles que les argiles de Boom, du COx et OPA). Par ailleurs, il est envisagé d'établir des liens avec des URL pertinents (comme Mol, Bure, Mt. Terri, etc.) pour permettre la transmission des résultats à l'échelle du terrain.

Au sein du projet EURAD, le CNRS-ULorraine assume le rôle de partenaire actif. Sa contribution se manifeste notamment au sein des sous-tâches 3.1 et 3.2.

Dans le cadre des expérimentations menées par le CNRS-ULorraine, l'objectif primordial consiste à examiner les répercussions des fissures causées par l'endommagement sur la perméabilité au gaz de l'argilite du COx, en particulier au niveau de l'Excavation Damaged Zone (EDZ). Ces expériences

impliqueront la réalisation d'essais de compression triaxiale avec tomographie aux rayons X, le tout étant exécuté sur des échantillons orientés parallèlement et perpendiculairement.

De même, l'effort engagé par le CNRS-ULorraine vise à investiguer l'influence du processus d'auto-colmatage sur la perméabilité à l'eau et au gaz de l'argilite du COx, toujours dans le contexte de l'EDZ. Ces investigations seront concrétisées à travers la réalisation d'essais d'auto-colmatage en cellule triaxiale avec tomographie aux rayons X sur des échantillons artificiellement fracturés, alignés parallèlement et perpendiculairement.

Les travaux de recherche de cette thèse s'inscrivent dans le cadre des sous-tâches 3.1 et 3.2.

1.1.3.2 WP7 (HITEC)

L'objectif global de ce WP est d'examiner la faisabilité et la sécurité de l'augmentation de la température sur le comportement des matériaux argileux (formations rocheuses argileuses et matériaux argileux artificiels comme les bouchons en bentonite) à des températures élevées, tout en développant des modèles THM adaptés. Il a également pour but d'améliorer l'évaluation des effets de l'accumulation de surpressions d'eau interstitielle induites par la chaleur émanant des déchets radioactifs sur le comportement et les propriétés THM de la roche argileuse hôte. Enfin, ce projet permettra d'identifier les processus à haute température et d'évaluer l'impact de ces températures élevées sur les propriétés THM du bouchon en bentonite. Pour atteindre ces objectifs, ce WP propose 5 tasks :

- Task 1 : S/T coordination, State-of-the-art and training material
- Task 2 : Clay host rock <120°C
- Task 3 : Clay buffers >100°C
- Task 4 : Impacts and deployment of results
- Task 5 : Civil Society interaction

Le CNRS-ULorraine contribue aux travaux de recherche de ce WP sur la tâche 2. L'objectif principal de cette tâche consiste à approfondir la connaissance du comportement thermo-hydro-mécanique (THM) de la roche hôte argileuse afin de contribuer à l'optimisation de la conception du site de stockage. Plus précisément, cela implique des expérimentations (pour les champs proches et lointains), de la modélisation et des exercices de benchmark.

La caractérisation du comportement thermo-hydro-mécanique (THM) in situ de la roche hôte argileuse revêt une importance capitale dans la conception de l'installation souterraine de stockage des déchets nucléaires, ainsi que pour garantir une sécurité à long terme. Lorsqu'une élévation de température survient dans un milieu peu perméable, l'eau interstitielle se trouve comprimée en raison de la différence entre son coefficient de dilatation thermique et celui du squelette solide de la roche, engendrant ainsi une surpression. Une compréhension plus approfondie du comportement THM permettra d'optimiser la configuration du stockage.

Dans le champ proche, l'excavation de galeries ou de microtunnels engendre la création d'une zone fracturée autour de ces structures. L'évolution du champ de contraintes effectives à proximité des galeries, résultant de l'augmentation de la température, peut déclencher l'ouverture de fractures ou la propagation de induites par l'excavation initiale.

En ce qui concerne le champ lointain, l'élévation de la température conduit à une augmentation de la pression interstitielle, provoquant ainsi une réduction de la contrainte verticale effective, pouvant dépasser

la résistance à la traction de la roche et entraîner des dommages. Des phénomènes tels que la fracturation ou la réactivation de failles ne sont pas exclus.

La tâche 2 comprend 3 sous-tâches (subtasks) :

- Subtask 2.1 : Experiments near field with EDZ
- Subtask 2.2 : Experiments on far field - effect of over pressure due to thermal load
- Subtask 2.3 : THM modelling of effect of temperature in near and far field – Benchmark exercise

La sous-tâche 2.1 se focalisera sur le champ proche, avec pour objectif d'évaluer une possible extension du réseau de fractures engendrées par l'excavation. Elle repose sur des expériences en laboratoire pour apporter des réponses sur les effets de l'augmentation de la température sur les processus de fracturation et d'auto-colmatage dans l'EDZ. L'impact de la température sur les processus d'auto-colmatage (évolution du volume des fissures et de la perméabilité en fonction de la percolation d'eau) sera étudié expérimentalement par tomographie aux rayons X et neutrons sur des échantillons fracturés à différents temps d'essai et températures. La sous-tâche 2.2 s'appuie sur des expériences en laboratoire sur des roches hôtes argileuses pour apporter des réponses sur les effets de l'augmentation de température sur les comportements mécaniques à court et long terme (déformations, propriétés élastiques, résistance à la rupture) et sur l'évolution de l'endommagement et de la perméabilité dus aux surpressions d'eau interstitielle.. En parallèle, la sous-tâche 2.3 sera dédiée à l'élaboration de modèles THM en mesure d'intégrer les processus étudiés dans les sous-tâches 2.1 et 2.2. Les résultats obtenus dans le cadre des sous-tâches 2.1 et 2.2 serviront à calibrer ces modèles, en vue de mener des exercices de benchmark sur des données expérimentales in situ déjà existantes..

Le CNRS-ULorraine apportera sa contribution aux sous-tâches 2.1 et 2.2.

1.2. Les argiles : propriétés

1.2.1. Généralités sur les argiles

D'après les recherches de Morgenstern & Eigenbrod (1974), les roches argileuses constituent plus de 70% des roches sédimentaires. Elles regroupent diverses roches qui contiennent une proportion élevée de minéraux argileux (>50%). Bergaya et al. (2006) ont démontré que les roches argileuses présentent des caractéristiques mécaniques et physiques situées entre celles des roches et des sols. Elles sont plus rigides et résistantes qu'un sol, et certaines, comme l'argile à Opalinus ou l'argilite du Callovo-Oxfordien, possèdent des propriétés physiques et mécaniques similaires à celles des roches (Coll, 2005).

Les minéraux argileux, formant la structure fondamentale des roches argileuses, résultent du processus d'altération et de dégradation des roches. La variété des argiles découle des fluctuations des paramètres physiques environnementaux, tels que la température, la pression, le pH, et autres, influençant ce processus de dégradation. Ces produits d'altération et de dégradation se déposent en couches successives qui se structurent au fil du temps. La formation d'une structure se fait par l'interconnexion des particules et la cimentation (par des composés non argileux, tels que l'hydroxyde de fer ou la matière organique).

La couche tétraédrique est constituée de deux plans d'atomes d'oxygène, et elle renferme un atome de silicium en coordination tétraédrique. La couche octaédrique est constituée de deux plans d'atomes d'oxygène et de groupes hydroxyles, dans lesquels l'aluminium, le fer ou le magnésium sont liés en

coordination octaédrique. De manière graphique les unités structurales de ces deux types de couches sont présentées sur la Figure 1-6.



Figure 1-6 : Structure minérale de base des argiles : la structure tétraédrique (a) et la structure octaédrique (b) (Didier, 2012).

Lorsque ces unités de base s'associent pour former des feuillets, on les désigne couramment sous le terme d'argiles, qui sont des aluminosilicates feuilletés ou phyllosilicates. On distingue trois familles de feuillets d'argile : les feuillets 1:1 ou TO, composés d'une couche tétraédrique (T) et d'une couche octaédrique (O), les feuillets 2:1 ou TOT, ainsi que les feuillets 2:1:1. Ces différents types de feuillets sont illustrés dans la Figure 1-7. On distingue généralement un assemblage de feuillets comme une particule, tandis qu'un regroupement d'entités particulières est qualifié d'agrégat.

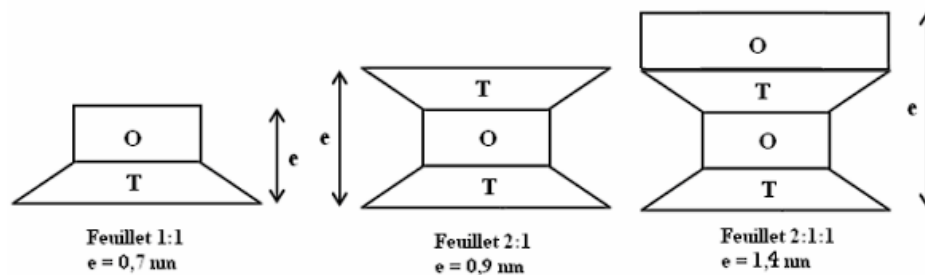


Figure 1-7 : Familles de feuillets argileux (Didier, 2012).

La substitution isomorphique de certains ions (Al^{3+} , Si^{4+}) par des cations de charge inférieure provoque un déficit de charges positives au sein de ces feuillets, entraînant ainsi la présence de cations interfoliaires échangeables pour compenser la charge structurale négative. Les minéraux argileux présentent une grande variété en fonction de différents paramètres tels que la nature des cations et des liaisons interfoliaires, l'orientation et l'arrangement des feuillets, ainsi que la surface accessible à l'eau. Quatre grandes catégories se sont développées à partir des diverses configurations d'assemblage et de substitutions de ces paramètres :

- Kaolinite $\text{Si}_2\text{Al}_2\text{O}_5(\text{OH})_4$ (1 :1)
- Illite $(\text{Si},\text{Al})_4(\text{Mg},\text{Al})_2\text{O}_{10}(\text{OH})_2$ (2:1)
- Smectite (montmorillonite, vermiculite) $(\text{Si},\text{Al})_4(\text{Mg},\text{Al})_2\text{O}_{10}(\text{OH})_2(\text{Na},\text{Ca})$ (2:1)
- Chlorite $(\text{Si},\text{Al})_4(\text{Fe},\text{Mg},\text{Al})_6\text{O}_{10}(\text{OH})_8$ (2:1:1)

Concernant les phyllosilicates, la couche octaédrique peut être occupée par des cations de valence trivalente ou certains cations de valence divalente, ce qui donne lieu à une distinction entre les phyllosilicates dioctaédriques. On a d'une part, les phyllosilicates trioctaédriques, dans lesquels tous les sites octaédriques sont occupés par des ions divalents. D'autre part, les phyllosilicates trioctaédriques, où les cations trivalents prédominent dans la couche octaédrique, laissant un site octaédrique sur trois vacant.

Les feuillets des argiles présentent un déficit de charges positives, ce qui explique la présence de cations interfoliaires interchangeables. La nature de ces cations joue un rôle déterminant dans la résistance de la

liaison. Les smectites, pour illustrer, présentent un déficit global de charges compensé par une abondance de cations hydrophiles tels que Ca^{2+} et Mg^{2+} . Lorsqu'une argile déshydratée est exposée à de la vapeur d'eau, les molécules d'eau peuvent pénétrer facilement dans l'espace interfoliaire, provoquant ainsi le gonflement de l'argile. Les molécules d'eau ont la capacité d'interagir avec la surface chargée négativement par le biais de différents types de liaisons, tels que les liaisons hydrogène, les forces de Van der Waals et l'adsorption polaire, formant ainsi une couche d'eau immobilisée. Parmi les minéraux argileux, seules les smectites sont capables de subir un gonflement, contrairement à l'illite, à la kaolinite et à la chlorite, qui présentent des distances interfoliaires stables.

Les roches argileuses font l'objet de nombreuses études en raison de leur importance dans de nombreuses applications industrielles. Elles sont utilisées, par exemple, dans les sites de stockage de déchets en surface où des phénomènes tels que le gonflement, les fissurations, les changements ioniques ou les cycles climatiques ont un impact important sur les transferts hydrauliques (Gérard-Marchant, 1998 ; Lin et Benson, 2000). Les problématiques similaires sont également présentes dans le cadre d'un site de stockage en profondeur, et les principes utilisés sont comparables.

1.2.2. Le milieu poreux

Un milieu poreux désigne un solide présentant une structure complexe contenant des cavités appelées pores. Ces pores peuvent être interconnectés et contenir une ou plusieurs phases fluides qui peuvent s'écouler. Les particules solides constituent la matrice solide. Dans le contexte des argilites, deux fluides sont considérés : le gaz et l'eau de site. La Figure 1-8 illustre une représentation bidimensionnelle d'un milieu poreux.

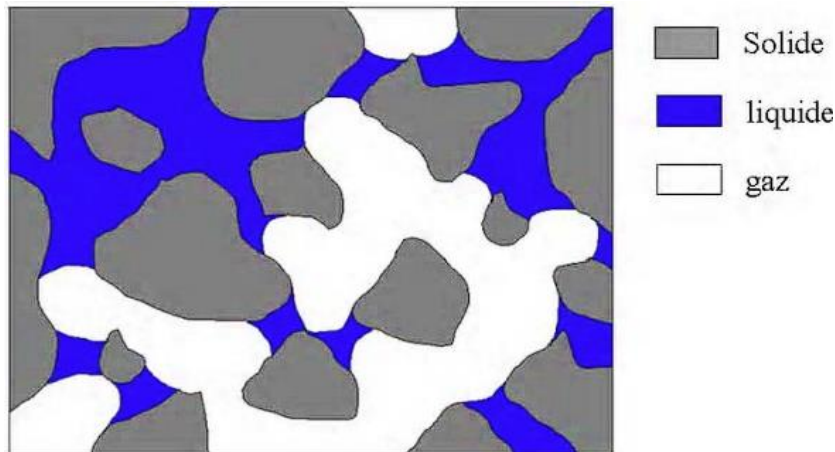


Figure 1-8 : Schématisation d'un milieu poreux (Boulin, 2008).

Un milieu poreux se caractérise par la présence à la fois d'une matrice solide et de pores. Les principales caractéristiques sont les suivantes :

- La porosité totale (ϕ_t) qui correspond à la proportion volumique des pores dans la matrice. Elle peut être exprimée par le rapport entre le volume total de vide (V_v) et le volume total du milieu poreux (V_t) :

$$\phi_t = \frac{V_v}{V_t} \quad (1.1)$$

- La teneur en eau de la matrice poreuse (w) exprimé en pourcentage qui représente le poids d'eau (P_w) par rapport au poids total sec du milieu poreux (P_t) :

$$w = \frac{P_w}{P_t} \times 100 \quad (1.2)$$

- La distribution des tailles de pores correspond à la proportion de porosité occupée par chaque taille de pore dans le matériau. Chaque pore possède un diamètre caractéristique différent, ce qui permet de distinguer trois classes de pores. Les catégories correspondantes sont répertoriées dans le Tableau 1-3.

Tableau 1-3 : Classe des pores en fonction du diamètre (Coll, 2005).

Type de pores	Diamètre de pores considérés (nm)	Matériaux hygroscopiques
Macroporosité	Diamètre > 100 nm	
Mésoporosité	4nm < Diamètre < 100 nm	
Microporosité	Diamètre < 4nm	

En ce qui concerne le transfert à travers un milieu poreux, la perméabilité (perméabilité intrinsèque k en m^2) est une mesure de la facilité avec laquelle un fluide s'écoule à travers le matériau poreux, en particulier les transferts advectifs contrôlés par un gradient de pression. La tortuosité (τ), quant à elle, affecte le transfert par diffusion en décrivant le chemin tortueux parcouru par une molécule en raison de la porosité, ce qui peut rendre la diffusion plus ou moins difficile. elle affecte également la perméation.

La connectivité et la forme des pores sont également des paramètres importants. D'une part, la connectivité entre les pores, qu'ils soient en forme de bouteille ou en cul-de-sac, entraîne une hystérésis plus ou moins prononcée lors des cycles de sorption-désorption. D'autre part, la forme générale d'un pore, caractérisée par un facteur de forme, crée des conditions géométriques plus ou moins favorables aux transferts.

Dans la vie quotidienne, on peut rencontrer divers exemples de matériaux poreux tels que les textiles, les papiers et les sols. Les argiles, en tant que roches sédimentaires, ne font pas exception et possèdent également une certaine porosité. L'arrangement des particules et des agrégats donne lieu à différentes structures et à des pores de formes et de tailles variées. Selon Salles et al. (2009), plusieurs types de pores sont distingués, notamment les pores interfoliaires, interparticulaires et interagrégats. Les espaces entre les feuillets constituent les micropores, les espaces interparticulaires constituent les mésopores, tandis que les espaces entre les agrégats comprennent à la fois les méso et les macropores. La Figure 1-9 offre une représentation visuelle de ces différents types de pores.

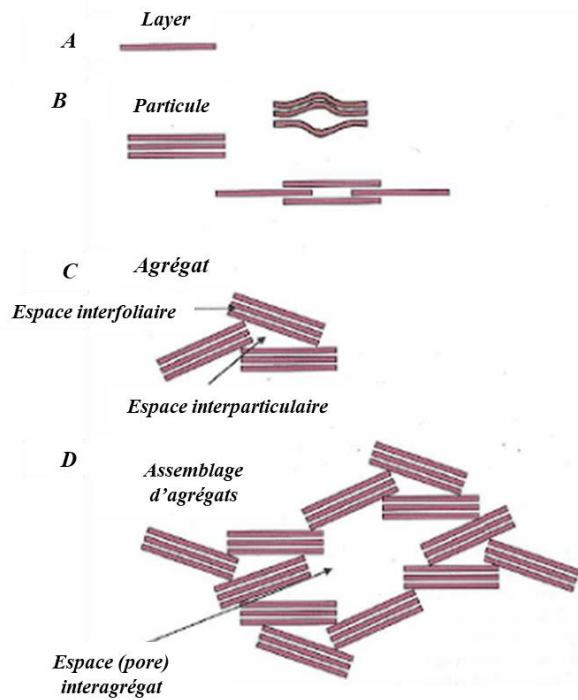


Figure 1-9 : Représentation visuelle des différents type de pore : (A)couche d'argile minérale ou feuillet, (B) particule, (C) agrégat, (D) assemblage d'agrégats (Bergaya *et al.*, 2006).

1.2.3. L'argilite du Callovo-Oxfordien

La couche argileuse du Callovo-Oxfordien, sélectionnée pour le stockage géologique des déchets radioactifs, se situe à une profondeur comprise entre 400 et 600 mètres (Andra, 2005) dans le bassin Parisien. Ce bassin se caractérise essentiellement par une succession de strates sédimentaires, où les formations argileuses prédominent, entrecoupées de couches calcaires. Au sein de cette séquence, le Callovo-Oxfordien occupe une épaisseur de 130 mètres, se trouvant encadré par les couches calcaires du Jurassique, à savoir le Dogger et l'Oxfordien (Figure 1-10). Les contraintes initiales présentes dans l'argilite au niveau du site de stockage des déchets radioactifs s'élèvent à environ 12 MPa dans la direction perpendiculaire aux stratifications, représentant ainsi la pression lithostatique à une profondeur de 500 mètres.

Les études menées par l'Andra (2005) ont démontré que l'espace poreux de l'argilite du COx représente environ 18%. Cette porosité est composée d'environ 10% de macropores ($> 1 \mu\text{m}$), de 86% de mésopores ($0,1 \mu\text{m}$ à $1 \mu\text{m}$) et de 4% de micropores ($< 1 \mu\text{m}$), selon les trois classes répertoriées dans les travaux de Coll (2005) (Tableau 1-3). Cette porosité a été évaluée à l'aide du test d'intrusion au mercure complété par l'adsorption d'azote.

Dans leur étude sur la corrélation entre la morphologie du réseau poreux des argilites finement poreuses et leurs propriétés de transport des fluides, Song *et al.* (2015) ont examiné la taille des pores de l'argilite du COx en utilisant diverses méthodes. Grâce à la combinaison de l'ion focalisé et de la microscopie électronique à balayage (FIB/SEM), ils ont réalisé une visualisation du réseau poreux de l'argilite COx à partir de séries d'images 2D et de volumes reconstruits en 3D. Leurs échantillons FIB/SEM sont représentatifs de la matrice argileuse à l'échelle mésoscopique. La porosité résolue par cette technique se situe dans la plage de 1,7 à 5,9 %, avec des tailles de pores maximales de 50 à 90 nm. La modélisation tridimensionnelle du réseau poreux offre des volumes poreux connectés entre les surfaces d'extrémité, une tortuosité, une densité et des chemins poreux les plus courts, accompagnés de leur distribution de taille de

pores. À une résolution plus fine, la microscopie électronique en transmission (TEM) en 2D a révélé de grandes quantités de pores plus petits (2 à 20 nm) entre les agrégats d'argile, associés à une porosité locale de 14 à 25 % et des tailles de pics de 4 à 6 nm.

Une approche novatrice pour évaluer la porosité a été développée par Song *et al.* (2017), qui ont utilisé l'injection de gaz dans de l'argilite séchée ou partiellement séchée sous contrainte hydrostatique. Leur étude a révélé que l'argon ou l'hélium peuvent tous deux être employés pour évaluer la porosité totale des argilites avec cette méthode, mais que l'hélium est plus adapté à l'état partiellement saturé en eau (HR [0;85%]). Selon leurs mesures réalisées avec des gaz dans ces plages, la porosité moyenne du COx s'établit à 16,6 % $\pm$ 2,8 %, pour des teneurs totales en argile de 43,9 % $\pm$ 7,5 %.

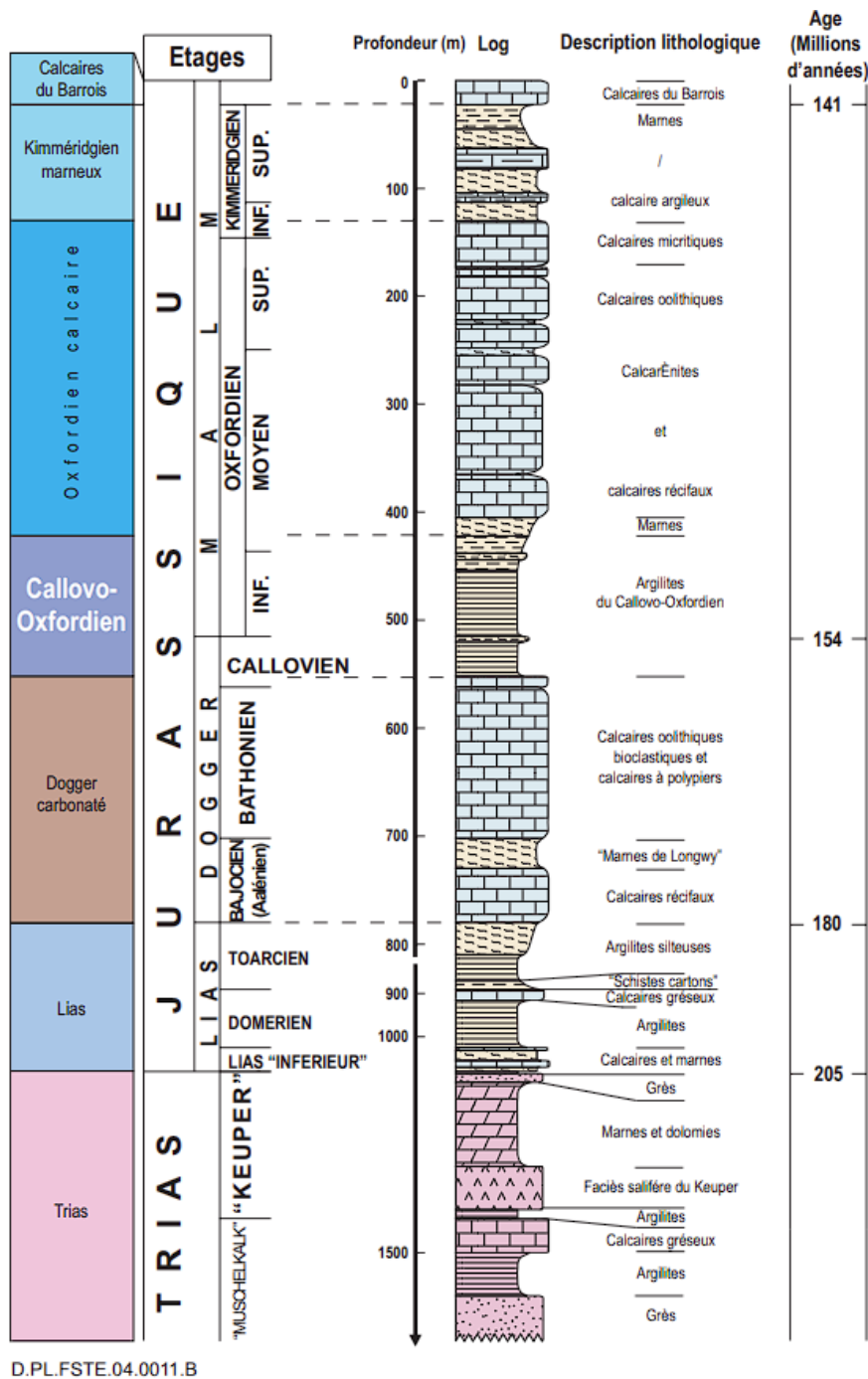


Figure 1-10 : Coupe géologique sur le site du laboratoire de Meuse/Haute-Marne (Andra, 2005).

1.2.3.1 Composition minéralogique

L'argilite du COx présente une minéralogie assez complexe. Sa composition minérale varie en fonction de la profondeur, principalement en raison des cycles sédimentaires géologiques (Lefranc et al., 2008), et la teneur en minéraux argileux est généralement inversement corrélée à la teneur en carbonates. On y trouve notamment (Mohajerani, 2011 ; Montes *et al.*, 2004 ; Robinet *et al.*, 2012, 2015 ; Sammartino *et al.*, 2003) : de 20 à 60% de phyllosilicates (illite, illite/smectite interstratifiée, kaolinite, mica, chlorite), de 10 à 40% de tectosilicates (quartz, feldspaths), de 15 à 80% de carbonates (calcite, dolomite), de 0 à 3% de pyrite, ainsi que des oxydes de fer, avec une teneur en matière organique inférieure à un pour cent. Robinet (2008) a constaté qu'à l'échelle mégascopique, l'argilite du COx était principalement composée de minéraux argileux, de carbonate et de grains de quartz. Il convient de souligner que cette argilite contient une forte proportion de minéraux argileux gonflants (smectites) (Delage *et al.*, 2014 ; Mohajerani, 2011) responsables de la capacité du gonflement de l'argilite et du phénomène d'auto-colmatage. Le Tableau 1-4 expose une évaluation des proportions des minéraux identifiés au sein de la couche du Callovo-Oxfordien. Ces estimations résultent d'analyses utilisant des techniques telles que la diffraction des rayons X (Robinet, 2008), ainsi que des méthodes chimiques telles que la calcimétrie, l'analyse élémentaire et la mesure de la capacité d'échange cationique (CEC) (Gaucher *et al.*, 2004).

Tableau 1-4 : Composition minéralogique pour un forage compris entre 489 et 508 mètres de profondeur (Gaucher *et al.*, 2004).

Minéral	Proportion minimum (% massique)	Proportion maximum (% massique)
Illite et Mica	17	21
Illite/Smectite désordonné	0	0
Illite/Smectite ordonné	20	24
Kaolinite	3,4	5
Chlorite	2,4	2,7
Quartz	17	21
Calcite	20	23
Dolomite/Ankérinite	3	6
Feldspath potassique	1,9	2,1
Plagioclase	1,0	1,1
Pyrite	0,5	0,8
Sidérite/Minéraux ferri-fères	1,9	2,7
TiO2	0,1	0,4
Minéraux phosphatés	0,2	0,3

De la base au sommet de la couche, la formation du COx a été subdivisée en quatre unités lithostratigraphiques (C2a à C2d) et plusieurs unités pétrophysiques (UA1, RIO, UA2, UA3, UT, USC1, RSO et USC2) définies dans le cadre du projet de l'Andra (Pellenard *et al.*, 2014). L'argilite du COx se compose principalement de trois couches distinctes, pour être plus précis (Giot *et al.*, 2019). Tout d'abord, il y a l'unité silto-carbonatée (USC), située au sommet de la couche de COx et présentant une teneur élevée en carbonates. Sa composition minéralogique est contrastée et variable, et sa porosité est d'environ 15%. Ensuite, nous avons l'unité de transition (UT), plus homogène, avec une teneur en argile comprise entre 30 et 40%. La teneur en carbonates augmente progressivement du bas (20%) vers le haut (30%). Enfin, il y a l'unité d'argile (UA), qui est la couche la plus riche en argile, avec des teneurs en argiles, en carbonates et en quartz d'environ 45-50%, 27% et 24% respectivement.

1.2.3.2 Eau porale

La constitution de la formation argileuse s'appréhende également à travers l'étude de la composition de l'eau interstitielle avec laquelle elle est en équilibre. La caractérisation chimique de cette eau revêt une importance cruciale pour appréhender le comportement des matériaux présents sur le site de stockage (tels que les colis de déchets et leur corrosion) ainsi que le transport et la spéciation des radionucléides. L'examen de cette eau poreuse est intrinsèquement complexe en raison de sa faible occurrence dans la matrice (environ 5 à 8 % en poids sec) au sein de la couche géologique, ainsi que de son interaction avec les minéraux argileux. Les espèces ioniques prédominantes comprennent les ions chlorure (Cl^-), bromures (Br^-) et sulfates (SO_4^{2-}) avec une concentration d'environ $10^{-2} \text{ mol.L}^{-1}$ pour le Cl^- et le SO_4^{2-} , et de $10^{-5} \text{ mol.L}^{-1}$ pour le Br^- . Ces concentrations varient en fonction de la région étudiée de la formation. Le pH de l'eau poreuse est généralement neutre et varie de 7 à 7,4, et l'équilibre des carbonates conduit à une pression P_{CO_2} calculée de 10^{-2} atm . Le Tableau 1-5 présente la composition de cette eau porale.

Tableau 1-5 : Composition de l'eau porale de la formation du Callovo-Oxfordien (Gaucher *et al.*, 2004).

pH		7,0 à 7,4	
pe		-2,9 à -3,9	
$\text{P}_{\text{CO}_2} (\text{Atm})$		10^{-2}	
$\text{E}_h (\text{mV})$		-171 à -230	
Espèces	Concentration (mmol/kg eau)	Espèces	Concentration (mmol/kg eau)
Al^{3+}	-	Ca^{2+}	7,6
Fe^{2+}	0,015	Na^+	56
$\text{Si}(\text{OH})_4$	0,14	Cl^-	41
Sr^{2+}	0,25	SO_4^{2-}	19
K^+	0,9	HS^-	-

Le terme P_{CO_2} désigne la pression partielle de dioxyde de carbone (exprimée en atm), établie par l'équilibre entre la calcite, la dolomite et le silicate de magnésium. En ce qui concerne le paramètre pe, il correspond au potentiel d'électron (sans unité).

Selon Revil & Glover (1998), les argilites, telles que l'argilite du COx, contiennent quatre formes différentes d'eau :

- l'eau structurale, présente dans le réseau des minéraux ;
- l'eau interfoliaire, située entre les feuillets des minéraux argileux (physiosorbée), en particulier dans la phase gonflante ;
- l'eau adsorbée en surface des particules, liée aux forces de Van der Waals et dipôle-dipôle, qui attirent les molécules d'eau à la surface des minéraux et qui forme une couche d'eau d'environ 1 nm d'épaisseur ;
- l'eau libre, principalement présente dans les macropores, qui n'est soumise à aucune force, à l'exception des effets capillaires lors du passage d'un pore à un autre, et qui peut donc circuler librement dans la roche.

Giannesini (2006) propose des valeurs de 6 à 12 % pour la proportion d'eau d'hydratation des cations interfoliaires, de 34 à 40 % pour les autres types d'eau adsorbée, et de 54 % pour l'eau libre.

1.2.3.3 Evolution de la perméabilité

Les pores identifiés par différentes méthodes (FIB/SEM, TEM, etc.) servent de voies de transfert de fluides, et leur perméabilité peut être corrélée à des ordres de grandeur spécifiques à travers des relations analytiques, telles que celles de Katz-Thompson ou Kozeny-Carman. L'approximation de Kozeny-Carman est obtenue en supposant une collection de tubes cylindriques et en résolvant l'écoulement à travers eux. Cette solution est ensuite généralisée par la multiplication d'un coefficient déterminé expérimentalement, selon la formule suivante :

$$k = \frac{\left(\frac{V_p}{S} \right)}{2F} \quad (1.3)$$

Où V_p/S est l'inverse de la surface spécifique et F est le facteur de formation, qui est égal à l'inverse de la diffusivité normalisée.

L'approximation de Katz-Thompson, quant à elle, est développée à partir de la théorie de la percolation. Elle nécessite un diamètre de pore critique et une mesure de la conductivité de l'échantillon de l'espace poreux, qui est ensuite liée au facteur de formation. La formule de Katz-Thompson est la suivante :

$$k = \frac{c d_c}{F} \quad (1.4)$$

Où d_c est le diamètre critique du pore et c est une constante calculée (non déterminée expérimentalement). Le diamètre critique des pores est le diamètre minimum présent des pores qui sont connectés à travers l'ensemble de l'échantillon. Le diamètre critique des pores est généralement déterminé par des expériences d'intrusion de mercure.

Les travaux de Song *et al.* (2015) ont permis, grâce à une caractérisation géométrique, d'obtenir une prédiction similaire de la perméabilité aux liquides à l'échelle de la matrice argileuse (FIB/SEM) et des pores nanoscopiques (TEM) à partir du modèle de Katz-Thompson, avec des valeurs allant de 0,536 à $1,59 \times 10^{-20} \text{ m}^2$ (FIB/SEM) et de 0,793 à $4,01 \times 10^{-20} \text{ m}^2$ (TEM). Selon ce modèle, les deux réseaux contribuent au transport des liquides. Les valeurs prédites sont cohérentes avec les mesures macroscopiques de perméabilité utilisant l'éthanol comme fluide saturant.

Du fait du temps important nécessaire pour atteindre un régime d'écoulement permanent sous un gradient hydraulique constant dans les argilites présentant une perméabilité intrinsèque très faible (comprise entre 10^{-20} et 10^{-21} m^2), les méthodes d'essai transitoires ont été pendant longtemps privilégiées par rapport aux méthodes en régime permanent (Mohajerani, 2011). Mais, de récentes études menées par Grgic *et al.* (2023) et P. F. Boulin *et al.* (2012) montrent qu'avec les nouvelles techniques expérimentales, la méthode en régime permanent peut être aussi efficace et rapide que la méthode en régime transitoire (pulse test).

Brace *et al.* (1968) ont utilisé une méthode transitoire appelée "pulse test" basée sur la diffusion de pression. Hsieh *et al.* (1981) ont proposé une solution analytique du test d'impulsion adaptée aux roches où l'hypothèse d'incompressibilité de l'eau par rapport à l'échantillon n'est plus valide. Dans ce test, un échantillon cylindrique peu élargi de roche est relié à deux réservoirs de liquide en amont et en aval. Après la saturation de l'échantillon et l'équilibrage de la pression des pores, une augmentation brusque de pression

est appliquée dans le réservoir amont. La mesure de la perméabilité intrinsèque est réalisée en comparant l'évolution de la pression dans les deux réservoirs aux courbes théoriques. Cette méthode a été utilisée par Escoffier (2002) et Homand et al. (2004) pour déterminer la perméabilité des argilites du COx. Les résultats obtenus par Escoffier (2002) pour trois échantillons testés sous différentes charges à température ambiante sont présentés dans le Tableau 1-6.

Tableau 1-6 : Perméabilité intrinsèque à l'eau de l'argilite du Cox sous différents chargements (Escoffier, 2002).

Echantillon	EST05067-1					EST05581-2		EST05581-1	
Profondeur	454m					463m		463m	
Pression de confinement (MPa)	4	4	10	10	20	10	10	20	20
Pression interstitielle (MPa)	1	1,01	1	1,04	1	1,1	1,15	1,09	1,28
Perméabilité intrinsèque ($\times 10^{-20} \text{m}^2$)	4	4	2	2 à 1	1	10	10	0,5	0,65

Grgic *et al.* (2023) ont mené une série d'essais en laboratoire visant à étudier la perméabilité des échantillons d'argilite du COx en utilisant une cellule de compression triaxiale, en appliquant successivement sur le même échantillon les méthodes à régime permanent et transitoire (pulse test). Les valeurs de perméabilité intrinsèque obtenues avec la méthode en régime permanent variaient entre $3,2 \times 10^{-21}$ et $6,5 \times 10^{-21} \text{ m}^2$ en amont et entre $1,1 \times 10^{-21}$ et $4,9 \times 10^{-21} \text{ m}^2$ en aval avec l'eau synthétique de l'ANDRA, et entre $5,3 \times 10^{-21}$ et $6,4 \times 10^{-21} \text{ m}^2$ en amont et entre $4,0 \times 10^{-21}$ et $5,6 \times 10^{-21} \text{ m}^2$ en aval avec une eau de percolation chimiquement équilibrée. Ces valeurs étaient significativement inférieures à celles obtenues avec la méthode de pulse test, en raison d'un gonflement interparticulaire et de processus osmotiques pendant le régime d'écoulement permanent.

La perméabilité au gaz des argilites a été étudiée par plusieurs équipes dans différentes conditions (Marschall *et al.*, 2005 ; Yang *et al.*, 2010 ; Zhang et Rothfuchs, 2004), afin d'évaluer les transferts de gaz lors des différentes étapes de stockage. Les travaux de Zhang & Rothfuchs (2004) sur l'argilite du COx ont révélé que la perméabilité intrinsèque au gaz, parallèle au litage, varie de $8 \times 10^{-19} \sim 1 \times 10^{-17} \text{ m}^2$ pour une pression de confinement de 2,3 ~ 3 MPa, à $5 \times 10^{-19} \sim 8 \times 10^{-19} \text{ m}^2$ pour une pression de confinement de 14,5 ~ 16,2 MPa. Dans la direction perpendiculaire au litage, la perméabilité au gaz évolue de $6 \times 10^{-20} \sim 3 \times 10^{-19} \text{ m}^2$ pour une pression de confinement de 2,3 ~ 3 MPa, à $6 \times 10^{-20} \sim 1 \times 10^{-19} \text{ m}^2$ pour une pression de confinement de 14,5 ~ 16,2 MPa. Ces mesures de perméabilité ont été réalisées en régime permanent sous différentes pressions de confinement, en injectant de l'azote à travers des échantillons initialement saturés. Ces chercheurs ont également effectué d'autres essais de perméabilité en régime permanent dans les directions perpendiculaire et parallèle au litage pour des échantillons présentant différents teneurs en eau. Ces essais ont été réalisés sous une pression de confinement de 2,3 à 2,4 MPa. Les résultats sont présentés dans la Figure 1-11. Ces travaux démontrent que la perméabilité diminue avec l'augmentation de la teneur en eau. La perméabilité ici est relative vu qu'on est dans un milieu poreux en condition biphasique (eau et gaz). De plus, ils mettent en évidence une anisotropie de perméabilité qui peut être expliquée par une densité plus élevée des pores interconnectés parallèlement au litage (Renner *et al.*, 2000).

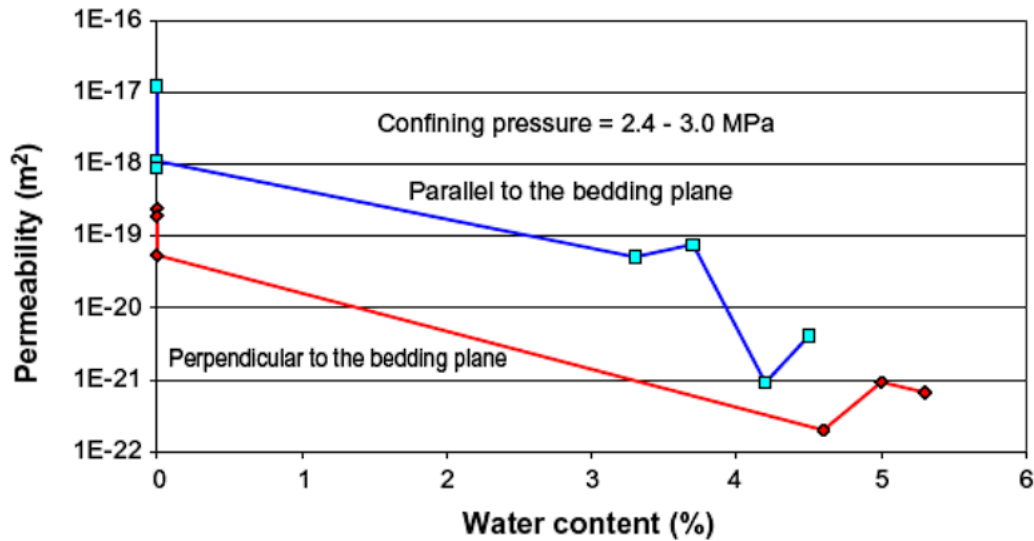


Figure 1-11 : Perméabilité au gaz en fonction de la teneur en eau (Zhang et Rothfuchs, 2004).

Zhang & Rothfuchs (2008) ont réalisé des mesures de perméabilité au gaz sur différents échantillons présentant des fissures préexistantes, sous différentes contraintes, dans le but d'étudier l'effet de la recompaction sur la perméabilité au gaz des échantillons endommagés. Au cours de leurs recherches, ils ont étudié des échantillons de COx présentant des fractures de cisaillement générées par une charge déviatorique. Ces échantillons ont été soumis à une recompaction par l'application de différents chemins de chargement. Lors du rechargement, la perméabilité au gaz le long de l'axe de l'échantillon a été mesurée. La Figure 1-12 illustre les valeurs de perméabilité mesurées en fonction de la contrainte axiale appliquée et des chemins de chargement. De ces travaux, il ressort que la recompaction réduit de manière significative la perméabilité. Toutes les configurations de charge appliquées entraînent une composante de force perpendiculaire aux plans de fractures de cisaillement, qui comprime les fractures et diminue la perméabilité des échantillons fracturés. En raison des caractéristiques et des processus de fermeture des fissures différents, le taux de réduction de la perméabilité varie d'un échantillon à l'autre. La perméabilité initialement élevée de 10^{-18} m^2 atteinte à la rupture peut être réduite à des niveaux de 10^{-19} à 10^{-20} m^2 en augmentant la contrainte de compression à 15 MPa le long des chemins de rechargement testés.

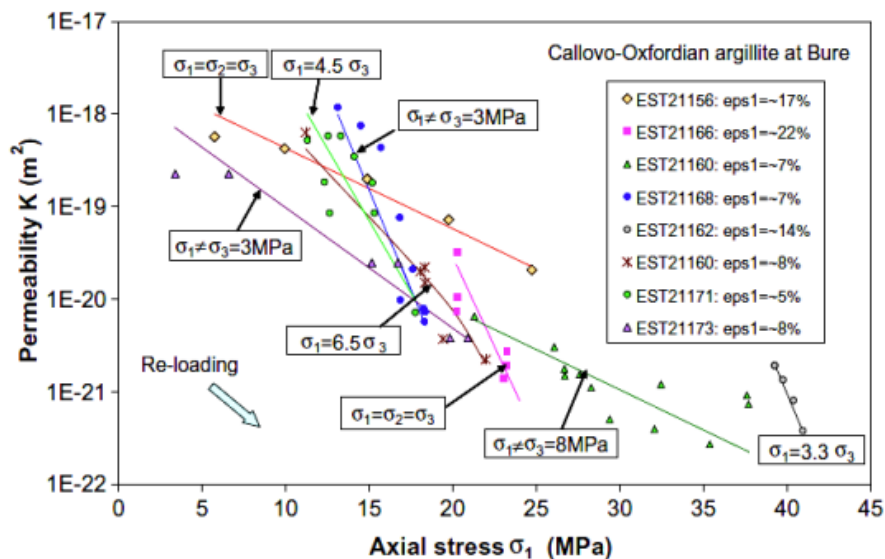


Figure 1-12 : Changements de la perméabilité au gaz des échantillons de COx fracturés le long de différents chemins de recompactage (Zhang et Rothfuchs, 2008).

1.2.3.4 Comportement mécanique

➤ Effet de la Saturation

En ce qui concerne le stockage souterrain des déchets radioactifs, il convient de noter que le comportement mécanique de l'argilite du COx, initialement saturée, révèle une sensibilité marquée aux variations de la teneur en eau. D'ailleurs, des investigations portant sur d'autres catégories de roches ont authentifié que l'accroissement de cette teneur occasionne une réduction conjointe de la contrainte de rupture et du module élastique initial. Pour ce qui est de l'argilite du COx, des études antérieures ont montré que l'effet de la teneur en eau s'avère intimement lié à la modification de la microstructure (Bornert *et al.*, 2010 ; Homand *et al.*, 2006). De plus, les propriétés de rupture de l'argilite du COx sont influencées par le degré de saturation (Shao *et al.*, 2005; Yang *et al.*, 2010; Zhang & Rothfuchs, 2004). À une échelle microscopique, le cycle de séchage-réhumidification influe sur l'espacement entre les feuillets d'argile internes, débouchant ainsi sur un changement des propriétés mécaniques inhérentes à l'argilite du COx (Robinet, 2008). La déformation plastique de la matrice d'argile avec microfissures et croissance d'interfaces est le principal mécanisme de déformation de l'argilite du COx (Chiarelli *et al.*, 2003; Guéry *et al.*, 2008).

Les investigations menées par Zhang *et al.* (2012) ont effectué des tests de micro-indentation et de mini-compression pour étudier les propriétés mécaniques de l'argilite du COx avec différentes humidités relatives. Les résultats ont montré qu'à mesure que l'humidité relative augmentait, la résistance à la rupture et le module élastique diminuaient.

En s'appuyant sur les conclusions de Zhang *et al.* (2012), Hu *et al.* (2013) ont entrepris d'examiner l'impact de la teneur en eau et de la composition minéralogique sur le comportement mécanique de l'argilite du COx à travers des essais de micro-indentation et de mini-compression menés sur des échantillons prélevés à différentes profondeurs. Chaque profondeur correspondant à une composition minéralogique distincte au sein des formations d'argilite du COx. Les résultats ont révélé que la présence de minéraux argileux concourt à accroître la déformabilité globale de l'argilite du COx en vertu de la déformation plastique de la matrice d'argile tandis que, la résistance mécanique d'ensemble augmente à mesure que la teneur en calcite et en quartz s'élève.

Ces observations sont confirmées dans les travaux de Grgic *et al.* (2023), où une série d'essais visant à comprendre les effets de la saturation sur les propriétés hydromécaniques des échantillons d'argilite du COx ont été réalisés. Les essais ont été réalisés en laboratoire à l'aide d'une cellule de compression triaxiale, en appliquant des méthodes en régime permanent et de pulse test. Les résultats ont révélé que la resaturation des échantillons avant les essais de perméabilité, atteinte en moins de deux semaines, induisait des déformations volumique significatives dues au gonflement cristallin résultant de l'hydratation des minéraux argileux. De plus, l'impact de la saturation sur les propriétés mécaniques était notable, avec une diminution de la résistance à la rupture de 40 à 50 % après les tests de perméabilité. Le module de Young a également montré une diminution progressive, tandis que les rapports de Poisson ν_{12} et ν_{13} ont révélé un endommagement anisotrope du matériau.

➤ Effet de la Température

Au cours des dernières années, une série d'études portant sur le comportement Thermo-Hydro-Mécanique (THM) de l'argilite du COx a été menée, englobant divers environnements et méthodes expérimentales. Des recherches telles que celles menées par Masri *et al.* (2014), Blaise *et al.* (2014), Mohajerani *et al.* (2012), et Mohajerani *et al.* (2013) ont mis en œuvre des tests de pressurisation thermique dans des conditions à la fois drainées et non drainées, utilisant des cylindres creux et des cellules de compression

isotropes. Ces travaux ont permis d'évaluer le coefficient de pressurisation thermique ainsi que le coefficient de dilatation thermique, drainée et non drainée, de l'argilite du COx soumise à des conditions de chauffage.

Par ailleurs, des études de chauffage de l'argilite du COx sur des éprouvettes cylindriques, menées par Zhang *et al.* (2013), ont révélé une expansion du matériau entre 27 °C et 100 °C, suivie d'une contraction entre 100 °C et 150 °C. Ces résultats ont incité à une investigation approfondie de l'effet de la température sur les propriétés mécaniques de l'argilite du COx.

Ainsi, Liu *et al.* (2019) ont réalisé des essais triaxiaux avec décompression latérale sur des échantillons soumis à des températures allant de 20 °C à 90 °C. Leurs résultats ont démontré que l'augmentation de la température induit une dégradation de la résistance au cisaillement ainsi que des propriétés élastiques de l'argilite du COx. Parallèlement, (Zhang, 2021) a effectué des tests de décompression latérale sur des échantillons cylindriques prélevés dans la direction perpendiculaire au plan de stratification, pour des températures variant de 20 °C à 90 °C. Ces travaux ont également mis en évidence une légère diminution de la résistance à la rupture avec l'élévation de la température.

Pour étudier plus en profondeur ces phénomènes, Gbewade *et al.* (2023) ont réalisé des essais de compression dans une cellule triaxiale, en mesurant les contraintes axiales et latérales à différentes températures (20 °C, 40 °C, 60 °C, 80 °C, 100 °C et 150 °C), pour différentes pressions de confinement (0 MPa, 4 MPa et 12 MPa) et orientations (parallèle et perpendiculaire au plan de litage). Leurs résultats ont mis en évidence une phase initiale de chauffage générant une surpression d'eau de pore transitoire due à l'expansion thermique, entraînant la formation de microfissures principalement parallèles au plan de litage, notamment sous condition uniaxiale. Cet endommagement thermo-mécanique initial a été associé à une diminution globale de la résistance maximale à des températures plus élevées (jusqu'à 100 °C), principalement pour les échantillons parallèles sous condition uniaxiale.

Ces constats corroborent les résultats obtenus par Zhang (2021) et Liu *et al.* (2019), mettant en évidence une dégradation de la résistance à la rupture et des propriétés élastiques de l'argilite du COx avec l'élévation de la température, notamment lors d'essais triaxiaux avec décompression latérale, qui offrent un chemin de chargement plus représentatif de l'évolution des contraintes autour d'une cavité souterraine.

➤ Comportement à court terme

Depuis 1998, un ensemble d'études, d'initiatives européennes, de consortiums de laboratoires et de recherches partenariales avec l'Andra ont grandement contribué à une meilleure compréhension des comportements mécaniques et hydromécaniques complexes des argilites. Ces études englobent des essais uniaxiaux, triaxiaux (en compression et en extension) ainsi que des essais de traction, dans le but de caractériser le comportement à court terme de ce matériau (Andra, 2005, 2017; Armand *et al.*, 2013, 2014, 2016; A. S. Chiarelli *et al.*, 2003; Egermann *et al.*, 2006; Gatmiri, 2011; Hoxha *et al.*, 2004; Zhang *et al.*, 2019). Les résultats obtenus par le biais de ces essais, en particulier les courbes contrainte-déformation, ont révélé différentes caractéristiques du comportement macroscopique de l'argilite.

On observe ainsi une phase élastique linéaire pour de faibles contraintes déviatoriques, précédée d'une phase de serrage et de fermeture des microfissures initiales. Puis, survient une phase de durcissement non linéaire, résultant de l'apparition de déformations plastiques pour des contraintes déviatoriques modérées. Par la suite, une phase de ramollissement post-pic se manifeste, qui se montre fragile sous de faibles pressions de confinement, mais devient ductile avec l'augmentation de la pression de confinement. Le comportement résiduel du matériau est principalement caractérisé par des phénomènes de frottement et est

influencé par les macrofissures induites. La résistance de la roche dépend également du type de sollicitation (compression versus extension) et présente une certaine anisotropie. Cette anisotropie se traduit par une résistance minimale située entre 30° et 45° par rapport au plan de stratification, par exemple.

La Figure 1-13(a) illustre un exemple de résultats d'essais triaxiaux montrant une augmentation du seuil élastique, de la résistance au pic et de la résistance résiduelle avec l'augmentation de la contrainte de confinement. À l'instar de la plupart des autres roches, l'argilite du COx présente une résistance non linéaire et une transition d'une rupture fragile vers un comportement ductile à mesure que la pression de confinement augmente. De plus, il a été observé que le critère de résistance basé sur le critère de Hoek Brown s'ajuste de manière satisfaisante à la caractérisation de la résistance au pic de l'argilite du COx (Figure 1-13(b)). L'utilisation du critère parabolique de Hoek-Brown a permis de proposer deux ensembles de paramètres pour la limite élastique, le pic et la résistance résiduelle. L'un de ces ensembles, qualifié de "moyen", représente une position médiane parmi les données expérimentales, tandis que l'autre, dit "inférieur", représente la limite inférieure des points expérimentaux. Ce dernier est généralement utilisé dans les études de pré-dimensionnement et de rétro-analyse des structures du laboratoire LS M/H-M.

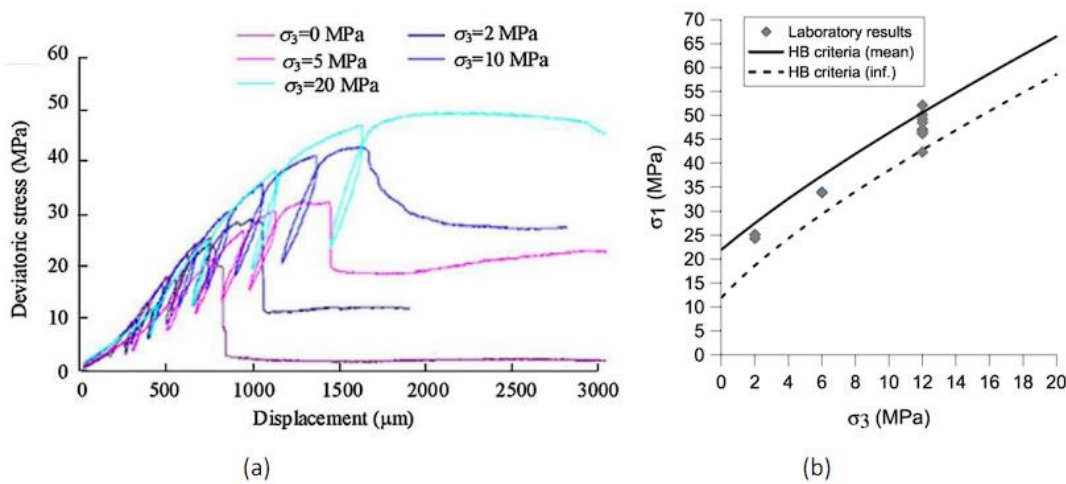


Figure 1-13 : (a) Courbes de contrainte déviatorique – déplacement axial (Armand *et al.*, 2013), et (b) critère de Hoek-Brown appliqué une à une campagne d'essais (Armand *et al.*, 2017).

Par ailleurs, les essais d'extension radiale triaxiaux (Figure 1-14) réalisés sur des échantillons d'argilite du COx ont également mis en évidence la dépendance du comportement mécanique vis-à-vis de la contrainte de confinement (Armand *et al.*, 2017). Pour une contrainte de confinement donnée, la contrainte déviatorique à la rupture se révèle inférieure à celle obtenue lors des essais de compression triaxiale. Ainsi, la résistance du matériau est tributaire du chemin de sollicitation, ce qui nécessite une attention particulière dans les structures où le cheminement des contraintes ne relève pas de la simple compression.

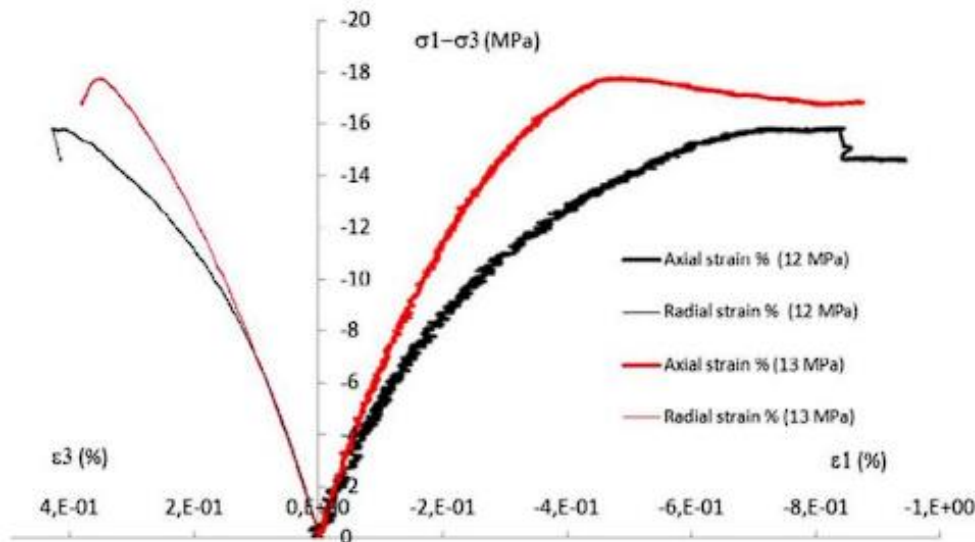


Figure 1-14 : Courbes de contrainte-déformations des essais triaxiaux (Armand *et al.*, 2017).

En outre, les bandes de localisation de déformations ont été analysées à travers différents essais, tels que la compression biaxiale (Bésuelle et Hall, 2011 ; Bésuelle et Lanata, 2014 ; Desbois *et al.*, 2017) et la compression triaxiale (Zhang, 2016). Lors d'un essai de compression biaxiale avec une contrainte de confinement de 2 MPa, la courbe de contrainte déviatorique - déformation axiale révèle une diminution rapide de la résistance dès que la déformation axiale dépasse la valeur associée au pic de résistance. À partir de photographies numériques, il est possible d'observer que cette diminution de résistance correspond au développement d'une discontinuité dans l'échantillon. Par la suite, une légère augmentation de la contrainte est constatée, suivie d'une seconde diminution de la résistance due à l'émergence d'une seconde série de fissures.

Concernant les résistances résiduelles (limites inférieure, supérieure et courbe moyenne), les travaux de Zhang (2016) dans le cadre de la compression triaxiale démontrent que ces résistances peuvent être reliées par un critère non linéaire tel que le critère de Hoek-Brown (Hoek et Brown, 1980), utilisé pour caractériser les résistances au pic. Elles peuvent également être exprimées par un critère linéaire, tel que le critère de Mohr-Coulomb, du moins pour des confinements inférieurs à la contrainte de transition. L'examen comparatif des critères de résistance résiduelle et de résistance au pic révèle une augmentation rapide des résistances résiduelles, tandis que les résistances au pic augmentent de manière plus modérée avec la contrainte de confinement, ce qui est cohérent avec l'évolution du comportement fragile vers le comportement ductile.

➤ Comportement à Long terme

La déformation par fluage constitue un phénomène fréquemment observé dans les matériaux géologiques, revêtant une importance significative dans le contexte du stockage à long terme des déchets radioactifs, notamment pour l'argilite du COx. Des études antérieures ont cherché à caractériser ce comportement différé sous diverses conditions environnementales.

Valere *et al.* (2002) ont proposé cinq essais d'indentation sur l'argilite du COx, soulignant que sous des contraintes déviatoriques élevées, telles que 10 MPa, la roche manifestait des taux de déformation par fluage de l'ordre de $3 \times 10^{-11} \text{s}^{-1}$ à $3 \times 10^{-10} \text{s}^{-1}$. L'influence de la température et du degré de saturation sur ce comportement a été soulignée par Gasc-Barbier *et al.* (2004), qui ont réalisé une série de tests de fluage, montrant une augmentation du taux de déformation avec l'élévation de la température. Cette tendance, déjà

observée dans d'autres roches cristallines (Pusch, 1993), a été corroborée par leurs travaux. Ils ont également constaté que même après près de deux ans de chargement constant, les déformations ne se stabilisaient pas complètement.

Dans la continuité de ces travaux, Liu et al. (2015) ont entrepris une série d'essais de fluage de compression triaxiale pour examiner les effets du niveau de contrainte déviatorique et de l'anisotropie structurale sous pression de confinement constante. Leurs résultats ont montré une augmentation de la déformation avec l'élévation de la contrainte déviatorique. Dans une autre étude, Liu et al. (2018) ont exploré les effets de l'humidité relative sur la déformation par fluage en réalisant des essais triaxiaux à différentes humidités relatives (59 %, 85 % et 98 %) sous la même pression de confinement. Leurs conclusions ont souligné une augmentation de la déformation par fluage avec l'augmentation de l'humidité relative et de la pression de confinement, mettant en évidence le rôle crucial des minéraux argileux, notamment la smectite, dans ce processus.

Dans une approche plus récente, Shi et al. (2020) ont utilisé la corrélation volumique numérique (DVC= Digital Volume Correlation) sur des images de microtomographie aux rayons X pour étudier la déformation par fluage de l'argilite du COx sous différents niveaux de contrainte déviatorique afin d'étudier la relation de déformation entre le niveau de contrainte et les différentes orientations de chargement pour examiner l'anisotropie structurale. Leurs analyses ont révélé des distributions non uniformes de déformations de fluage, soulignant l'importance de l'anisotropie structurale à l'échelle mésoscopique dans les processus de déformation et de rupture de ce matériau.

➤ Paramètres mécanique

Les travaux de Thorel (1995), Heitz (1997), Bauer (1997), Homand (1997, 2000), et A. Chiarelli (2000), sur l'argilite du COx ont permis la réalisation de nombreux essais et ont abouti à l'obtention de certains paramètres, qui sont représentés dans le Tableau 1-7.

Les coefficients élastiques tels que le module de Young et le coefficient de Poisson dépendent de la teneur en eau et de la teneur en carbonate, lesquelles varient en fonction de la profondeur de prélèvement (Escoffier, 2002). Les éprouvettes présentant une forte teneur en carbonate et une faible teneur en eau montrent une plus grande rigidité. Dans leurs travaux, Heitz & Hicher (2002) ont établi une corrélation satisfaisante entre la teneur en carbonate, la masse volumique humide et la résistance à la compression simple.

Tableau 1-7 : Quelques caractéristiques mécaniques de l'argilite du Cox (Mohajerani, 2011).

Paramètres	Andra (2005)	Heitz (1997)	Homand (1997, 2000)	Thorel (1995) Bauer (1997)	Chiarelli (2000)
Module d'élasticité $E_{\perp}$ (GPa)	3,8-4,3	2,89±0,64	5,81	3,1±0,56	8,27± 0,95
Module d'élasticité $E_{//}$ (GPa)		-	9,69±1,21	6,2±1,62	-
Résistance uniaxiale à la traction R_t (MPa)	2,7±1,5	-	-	-	-
Résistance uniaxiale à la compression R_C (MPa)	19,4	-	-	-	-
Coefficient de Poisson $\nu_{\perp}$	0,18- 0,37	-	0,2	0,31±0,06	0,19±0,01
Coefficient de Poisson $\nu_{//}$		-	0,23±0,057	0,34±0,015	-

La Figure 1-15 illustre l'évolution du module de Young en fonction de la contrainte de chargement axiale, mesuré à partir de la courbe de déchargement lors d'essais de compression simple menés par Zhang & Rothfuchs (2004). On constate qu'une élévation du module de Young se manifeste à mesure que la contrainte axiale croît, indépendamment de la teneur en eau présente dans l'échantillon. En revanche, il est à noter qu'à une contrainte donnée, les échantillons présentant une teneur en eau faible affichent un module de Young plus élevé que ceux qui ont une teneur en eau plus élevée. Cette observation nous amène à conclure que les argilites présentent une augmentation de leur rigidité élastique à mesure que la teneur en eau diminue.

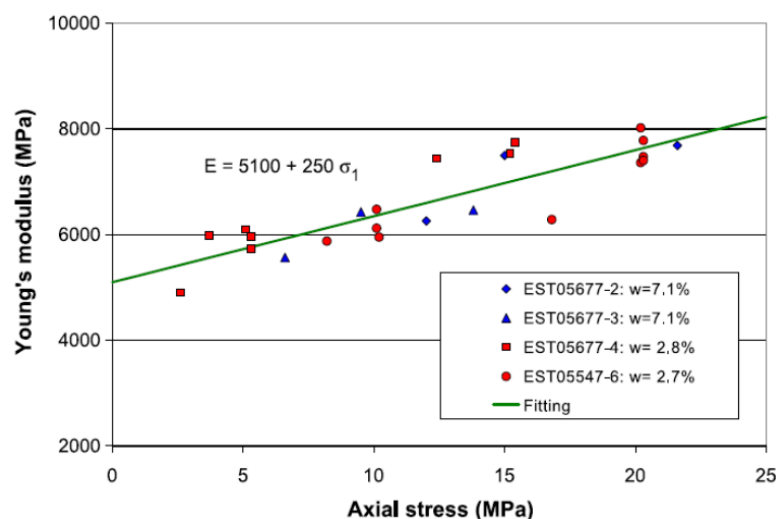


Figure 1-15 : Module de Young en fonction de la contrainte de chargement axiale (Zhang et Rothfuchs, 2004).

Zhang & Rothfuchs (2004) ont également effectué des essais en compression simple à différents degrés de saturation. Il ressort de ces travaux que la résistance uniaxiale à la compression (R_C) de l'argilite diminue avec l'augmentation du degré de saturation. Ce constat est en accord avec les résultats des essais de compression simple à succion contrôlée de Pham et al. (2007), qui ont obtenu des valeurs de module de

Young variant entre 5,8 et 12 GPa, ainsi que des valeurs du coefficient de Poisson entre 0,3 et 0,12, pour une variation de succion entre 2,7 et 115,2 MPa.

La présence de diverses distributions de microfissures, tant dans les directions parallèles que perpendiculaires au plan de litage, induit une anisotropie de la déformation élastique. L'anisotropie du comportement mécanique de l'argilite du COx a été analysée par Escoffier (2002) en se basant sur les résultats des essais de compression simple dans deux directions de la stratification effectués par différents chercheurs (Bauer, 1997 ; Homand, 1997, 2000 ; Thorel, 1995). À partir de ses analyses, Escoffier (2002) a conclu que les modules d'Young sont plus élevés dans la direction parallèle au litage que dans la direction perpendiculaire à celui-ci. Cependant, la diversité des coefficients de Poisson mesurés dans les deux directions n'a pas permis d'observer une influence claire de la direction sur ce paramètre.

Zhang & Rothfuchs (2004) ont également confirmé l'anisotropie du module élastique en réalisant des essais de fluage uniaxiaux, au cours desquels la déformation élastique réversible et la déformation viscoplastique irréversible ont été évaluées lors des cycles de décharge-recharge de la charge de fluage. Les valeurs sont représentées dans la Figure 1-16 en fonction de la charge axiale. Il ressort de ces travaux que les modules de Young de 4 à 5 GPa mesurés sur les petits échantillons ($d/l = 45/90$ mm) sont plus de deux fois supérieurs à ceux d'environ 2 GPa mesurés sur les grands échantillons ($d/l = 100/200$ mm), et d'autre part, la rigidité dans la direction parallèle au plan de stratification est jusqu'à 1,5 fois plus grande que celle perpendiculaire au plan de stratification. L'anisotropie de la déformation élastique est mise en évidence par les différentes distributions de microfissures dans les directions parallèles et perpendiculaires au plan de stratification. Par ailleurs, l'effet d'échelle pourrait s'expliquer par la présence de quantités variables de microfissures dans les grands et petits échantillons, ou par le fait que les petits échantillons se désaturent plus facilement que les grands, ces derniers ayant une teneur en eau plus importante en leur cœur. Les petits échantillons, étant plus secs, peuvent ainsi présenter un module d'Young plus élevé, comme observé par Pham et al. (2007).

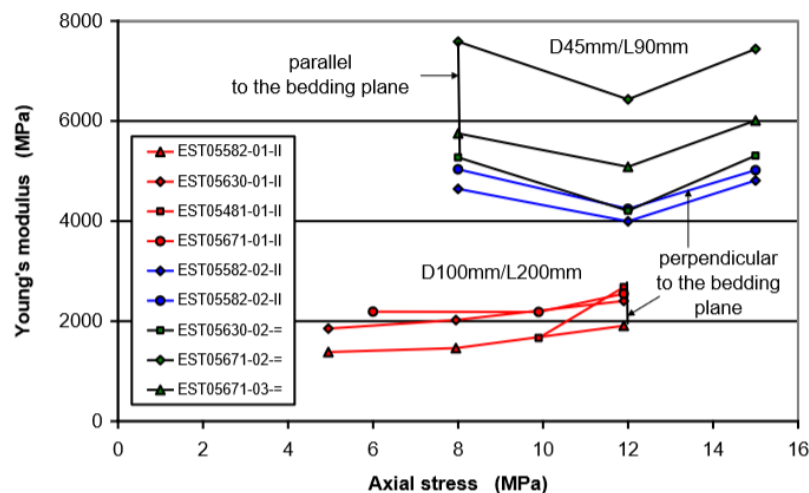


Figure 1-16 : Effet d'échelle et anisotropie du module d'Young (Zhang & Rothfuchs, 2004).

Homand et al. (2006) ont réalisé des essais triaxiaux sur les éprouvettes "quasi saturées" sous un confinement de 12 MPa, représentatif de l'état de contrainte in situ. Les résultats ont montré une résistance à la rupture de 48,9 MPa pour les éprouvettes dont l'axe est perpendiculaire au litage, et de 43,2 MPa pour celles dont l'axe est parallèle au litage, ce qui correspond à un rapport d'anisotropie relativement faible de 1,13.

➤ Paramètres poromécaniques

Les caractéristiques poroélastiques de l'argilite peuvent être obtenues directement à partir des résultats des essais en laboratoire ou par le biais de relations théoriques. Cependant, certains de ces paramètres demeurent sujets à une certaine incertitude, principalement en raison des complexités expérimentales et de la variabilité minéralogique. Les difficultés expérimentales majeures résident dans la faible perméabilité de la roche ainsi que sa déformabilité réduite. Les méthodes conventionnelles nécessitent des durées substantielles pour garantir la resaturation des échantillons avant les essais, tout en assurant la stabilisation des pressions et des déformations à chaque étape de chargement. En outre, lors de ces phases prolongées de stabilisation, des phénomènes tels que le fluage ou le gonflement introduisent des incertitudes additionnelles.

Vincké et al. (1998), Escoffier (2002) ainsi que Bemer et al. (2004)) ont entrepris la détermination du coefficient de Biot en utilisant des essais en cellule oedométrique. Ces essais reposent sur une séquence d'application alternée de cycles de chargement-déchargement en contrainte axiale à pression interstitielle constante, et de cycles de chargement-déchargement en pression interstitielle à contrainte axiale constante. À travers ces démarches, les chercheurs ont exploré la relation entre la compressibilité de l'argilite du COx et la contrainte appliquée, et ont mis en évidence une réduction du coefficient de Biot ainsi que de la compressibilité avec l'accroissement de la contrainte axiale.

Dans les recherches menées par Cariou *et al.* (2012), qui se sont appuyés sur deux configurations expérimentales distinctes (une pour la compression uniaxiale drainée et l'autre pour la mesure poromécanique de la "variation de la pression des pores" en triaxial), les tests poromécaniques triaxiaux ont confirmé les conclusions des tests de compression uniaxiale concernant l'anisotropie de la rigidité, l'accroissement de la rigidité sous charge et l'impact de la teneur en eau sur la rigidité. L'observation principale indique que l'argilite COx adopte un comportement similaire à celui d'un matériau de Terzaghi (1943) (avec un coefficient de Biot égal à 1) lorsqu'elle est soumise à une charge hydromécanique avec une teneur en eau massique constante, une situation qui correspond à divers scénarios in situ. Leurs travaux mettent en évidence que l'utilisation d'un modèle isotrope n'est pas pertinente, tandis qu'un modèle transverse isotrope est cohérent avec l'anisotropie de la rigidité mesurée à la fois par les tests de compression uniaxiale drainée et les tests poromécaniques triaxiaux de "variation de la pression des pores". En effet, il en ressort que l'argilite COx présente une rigidité supérieure dans le plan de stratification par rapport à celle observée perpendiculairement à celui-ci.

Au cours de l'étude menée par Heitz (1999), le coefficient de Biot a été déterminé dans des conditions de contrainte isotrope en se basant sur un ensemble de 11 échantillons provenant de 8 profondeurs distinctes. Les résultats de cette recherche démontrent que le coefficient de Biot varie, passant de 0,33 pour une proportion en carbonates de 30 % à 0,8 pour une proportion en carbonates de 20 %. Cette évolution suggère une corrélation positive entre le coefficient de Biot et la proportion relative de la phase argileuse.

Les caractéristiques poromécaniques déterminées au laboratoire présentent une dépendance à l'égard d'une multitude de facteurs. Le Tableau 1-8 offre une synthèse des résultats obtenus concernant l'argilite du Cox. Il est notable qu'une variabilité des valeurs expérimentales se manifeste en raison de la variation de divers paramètres, tels que la composition minéralogique de l'échantillon (qui fluctue en fonction de la profondeur de prélèvement), le degré de dommage préexistant dans l'échantillon testé (lié aux modalités d'excavation, à la durée de stockage de l'échantillon, au niveau de dessiccation, à la méthode de préparation de l'éprouvette), le taux de saturation de l'échantillon, le protocole expérimental adopté (saturations

préalables, conditions oedométriques ou isotropes, méthode de mesure des déformations) ainsi que le niveau de contraintes appliqué lors de l'essai.

Tableau 1-8 : Paramètres poromécaniques (Mohajerani, 2011).

		Thorel (1995)	Bauer (1997)	(Heitz, 1998)	Vincké (1997)	Coste (1999)	Escoffier (2002)		Bemer (2004)
Essai		Compression triaxiale		Compression isotrope	Compression oedométrique	Compression triaxiale	Compression isotrope	Compression oedométrique	Compression oedométrique
Gamme de contraintes appliquées (MPa)	σ	2-10	2-12	9-15	3,7-24,5	3-78	2-24	2-24	8-35
Gamme de pressions interstitielle (MPa)	u_w	?	?	2-4,8	0,8-1,78	?	1	1-7	2-11
Profondeur (m)	Prof.			460-500	460-500	425-460	447-500	447-500	434-515
Etat de saturation	S_r	Saturé	Saturé	Saturé	?	?	Saturé	Saturé	Saturé
Rapport d'anisotropie	R	?		?		1-5	1,7-2	1,87	
Compressibilité drainée (GPa ⁻¹)	C_d			0,8-3	0,36-1,48	0,17-0,25	0,2-0,65	0,69-0,17 calculé, Homand (2006))	
Compressibilité non drainée (GPa ⁻¹)	C_u	0,14-0,32	0,32- 0,45	1-2,5		0,037-0,45	0,06-0,18		
Compressibilité des grains solides (GPa ⁻¹)	C_s				0,12-0,35			0,017-0,1	
Compressibilité oedométrique (GPa ⁻¹)	C_{oedo}				0,21-0,91			0,1-0,42	0,22-1
Coefficient de Biot	b			0,2-1	0,42-0,84	0,36-0,65		0,521-0,952	0,45-0,62
Module de Biot (GPa)	M					0,094-0,24			0,45-2
Coefficient de Skempton	B			0,4-0,9		0,31-0,65	0,61-0,77		

1.2.3.5 Phénomène d'auto-colmatage

L'excavation de galeries souterraines dans les roches engendre la formation d'un réseau de fissures à proximité de la zone d'excavation, désigné sous le nom d'Excavation Damaged Zone (EDZ). Au sein du Laboratoire de Recherche Souterrain de l'Andra situé à Meuse/Haute-Marne (Bure, France), des EDZ ont été observées. La représentation conceptuelle de cette zone est illustrée sur la Figure 1-17. Ce réseau de fissures entraîne la désaturation de l'argilite et la perte de ses propriétés mécaniques et hydrauliques (notamment son étanchéité). Toutefois, il a été constaté que lors de la resaturation des structures, les fractures engendrées pendant l'excavation peuvent s'auto-colmater, entraînant ainsi à la fois une diminution significative de la perméabilité à l'eau au sein de l'EDZ et une restauration partielle des propriétés mécaniques de la roche (Bock *et al.*, 2010). Ce phénomène est appelé auto-colmatage et il diffère de l'auto-restauration. Contrairement à la restauration, le colmatage se caractérise par la restauration partielle des propriétés initiales de la roche. La restauration correspond au colmatage avec perte de la mémoire de l'état antérieur à la restauration ; ainsi, la fracture cicatrisée ne deviendra pas un site privilégié pour de nouvelles fractures simplement en raison de son état endommagé avant restauration (Bastiaens *et al.*, 2007). Dans le contexte du stockage des déchets radioactifs, il est crucial de comprendre le comportement à long terme de la zone endommagée.

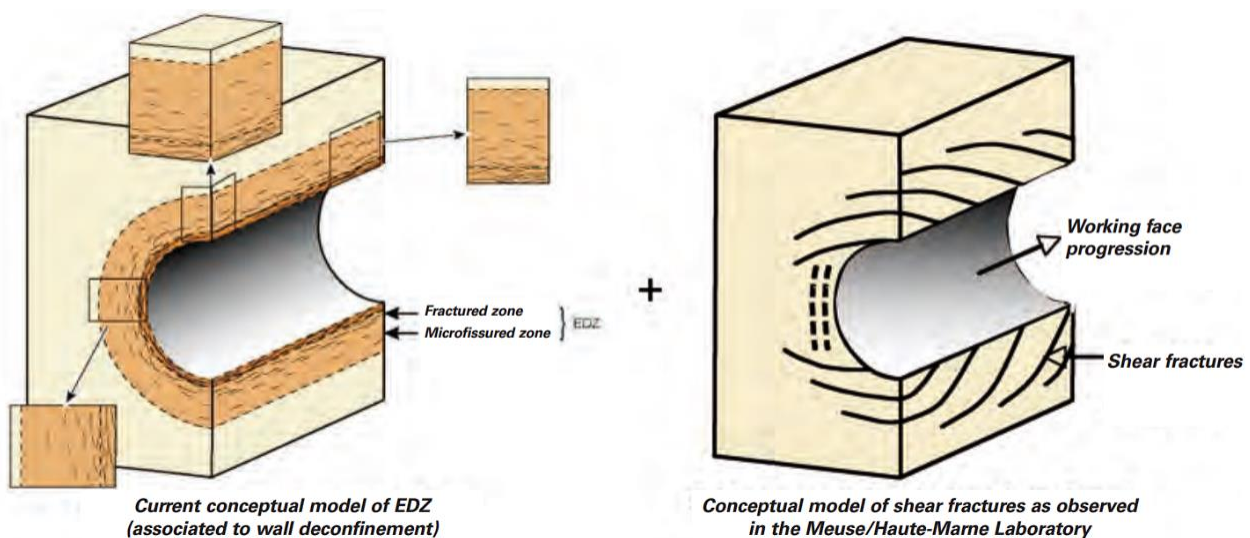


Figure 1-17 : Représentation conceptuelle de l'EDZ (Andra, 2005).

Le Tableau 1-9 synthétise les expériences in situ menées au sein du laboratoire souterrain de l'Andra, telles que présentées dans les travaux de Bock *et al.* (2010), au cours desquelles l'auto-colmatage a été observé. Ce tableau précise également l'ampleur des effets de colmatage observés. Il découle de ces recherches que l'auto-colmatage est un phénomène fréquent dans une vaste gamme de sols et de roches argileuses actuellement considérées dans le cadre des projets de stockage géologique profond. Cette gamme s'étend des argiles plastiques telles que l'argile de Boom dans l'URF HADES, jusqu'aux roches indurées, incluant les roches argileuses telles que les argilites du Callovo-Oxfordien à la Meuse-Haute Marne URL.

Tableau 1-9 : Exemples de tests URL dans lesquels des effets d'étanchéité ont été observés (Bock *et al.*, 2010).

Localisation	Test Objective	Experiment Technique employed	Main result Legend: ↓ = decrease K = hydraulic conductivity [m/s] k = permeability [m ²] OoM = Order of magnitude
Mont Terri URL	Influence of resaturation on fracture transmissivity	EB (engineered barrier) Experiment	In the EDZ-fractured zone: K ↓ at a rate of $\sim 10^{-1}$ [m/s] per annum
		GS (gas frac self- sealing) Experiment	T ↓ to $\sim$ intrinsic levels of $\sim 8.10^{-13}$ [m ² /s] in ~ 2 years (1999-2001)
		EH-Experim. Part a): Single EDZ fracture	T ↓ at a rate of $\sim 10^{-1}$ [m ² /s] per annum
		EH-Experim. Part b): EDZ fracture network	T ↓ from $\sim 5.10^{-7} \rightarrow 2.10^{-9}$ [m ² /s] in ~ 3 years (1999 - April 2002)
	Influence of mechanical stimulation of fracture closure on T	SELFRACT I: Directional loading of EDZ extension fractures by Plate Load Test (PLT)	T ↓ from $\sim 2 \cdot 10^{-9} \rightarrow 5 \cdot 10^{-11}$ [m ² /s] at PLT pressure of 4.8 MPa
		SELFRACT II: Isotropic loading of radial EDZ borehole combined with hydraulic testing in adjacent test intervals	T ↓ from $\sim 5.10^{-11} \rightarrow 2 \cdot 10^{-13}$ [m ² /s] at an effective dilatometer pressure of ~ 3.5 MPa
	Cutting off EDZ flow paths along the tunnel axis	EZ-A Experiment: ED cut-off by axial slots	k ↓ during water injection.
HADES URF	Depth of EDZ at which flow along fractures	Connecting Gallery: Oxidation of ~ 15 year old EDZ fractures	Evidence of sealing of EDZ fractures from air circulation of old test drift beyond 1 m depth
	Influence of resaturation on permeability k	SELFRACT III:	In the EDZ-fractured zone: k ↓ by $\sim 1/2 \cdot 10^{-1}$ [m ²] per annum Porewater pressure build-up in some nearest piezometers around the gallery measuring initially suction, then atmospheric pressure (opening of fracture).
		SELFRACT IV a: Collapsing borehole test	Qualitative evidence: Complete collapse of borehole after two months, followed by a recovery of stresses and porewater pressure
		SELFRACT IV b: Instrumented core	Qualitative evidence of sealing of the Boom Clay
Bure URL	Cutting off EDZ flow paths along the tunnel axis	KEY Experiment by cutting axial slots	Down to 1m depth: EDZ flow paths effectively cut-off: k ↓ from $\sim 1.10^{-9}$ - 5.10^{-14} [m ²] ↓↓ to 1.10^{-20} [m ²] ($\approx$ intrinsic value).

Bastiaens et al. (2007) ont défini le colmatage comme la réduction de la perméabilité des fractures par le biais de processus hydromécaniques, hydrochimiques ou hydrobiochimiques au sein de l'EDZ. Le colmatage se caractérise par une restauration partielle des propriétés initiales de la roche. Plusieurs auteurs se sont penchés sur le phénomène d'auto-colmatage des argilites induit par la percolation de l'eau. Selon Auvray et al. (2015), l'auto-colmatage résulte d'une réorganisation des minéraux et de la porosité dans la région de la fracture. Selon ces auteurs, trois processus principaux sont impliqués : le gonflement entre les feuillets des phases de smectite (gonflement intra-particulaire), le gonflement inter-particulaire dû aux effets osmotiques, et enfin, l'obturation ou le colmatage des fractures par agrégation de particules

détachées. Ces processus entraînent une réorganisation structurale au sein de la fracture, ce qui détermine, par conséquent, les propriétés hydromécaniques et de transfert de la zone de fracture colmatée. Par ailleurs, Bastiaens et al. (2007) ainsi que Van Geet et al. (2008) ont proposé une synthèse de diverses expériences in situ réalisées sur l'argile d'Opalinus (argilite indurée) et l'argile de Boom (argilite plastique) mettant en évidence les capacités de ces argiles à s'auto-colmater plutôt qu'à s'auto-restaurer. En ce qui concerne l'argilite Callovo-Oxfordienne, De La Vaissière et al. (2015) ont démontré la restauration partielle de sa perméabilité au cours d'expériences de resaturation in situ. Sur une période de resaturation d'un an, la conductivité hydraulique mesurée dans les forages a diminué jusqu'à quatre ordres de grandeur, se rapprochant, sans toutefois atteindre, la valeur de l'argilite saine.

Dans les Figure 1-18 et 1-19 on peut observer le processus d'auto-colmatage du point de vue ouverture de fissure et perméabilité à l'eau. Ces figures présentent un essai d'auto-colmatage réalisé sur un échantillon d'argilite du COx issu de l'UA. Cet essai a été réalisé par Giot et al. (2019) sur un échantillon sur lequel une fissure artificielle d'ouverture $800\ \mu\text{m}$ a été faite. On constate que l'auto-colmatage est effectif sur une telle ouverture, Cependant, même après 34 jours d'injection de fluide, la perméabilité est égale à $8 \times 10^{-19}\text{m}^2$: la perméabilité "naturelle" ($10^{-20} \sim 10^{-21}\text{m}^2$) n'a pas été atteinte. Ce résultat illustre donc la capacité de l'argilite du COx à se restaurer partiellement et ceci assez rapidement.

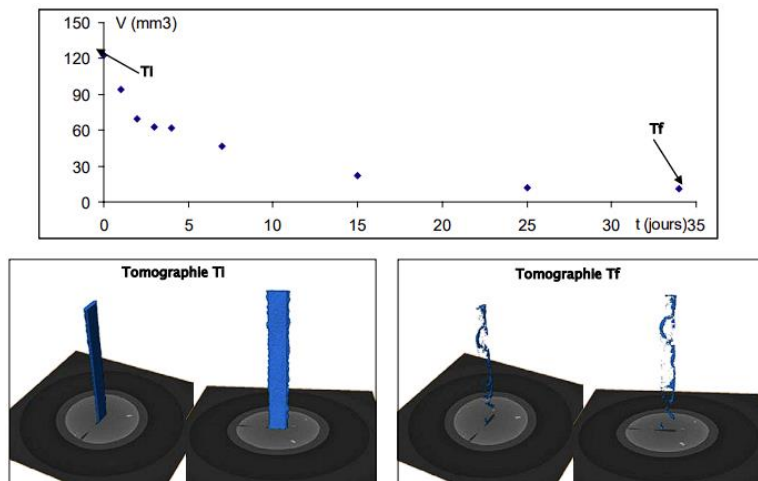


Figure 1-18 : Essai d'auto-colmatage - UA / EST51023-5 (//) ($\text{CaCO}_3 = 29\%$) Evolution du volume de la fissure en fonction du temps d'injection (Ti : tomographie initiale, avant l'injection, Tf : tomographie finale, après l'arrêt de l'injection) (Giot et al., 2019).

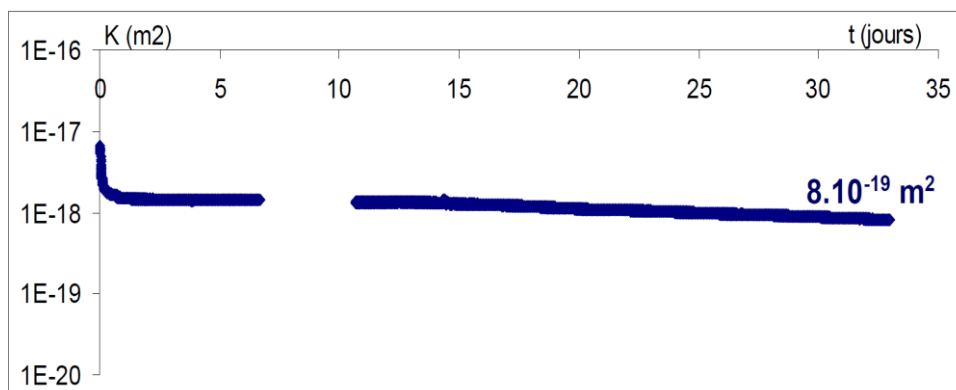


Figure 1-19 : Test d'auto-colmatage - UA / EST51023-5 ($\text{CaCO}_3 = 29\%$) Evolution de la perméabilité en fonction du temps d'injection (Giot et al., 2019).

Par ailleurs, Auvray et al. (2015) ont réalisé des essais d'auto-colmatage sur l'argilite du COx dans une cellule triaxiale en PEEK transparente aux rayons X (Figure 1-20) à température ambiante, mais en se limitant à des analyses en 2D par tomographie aux rayons X. Les travaux de Auvray et al. (2015), présentés dans la Figure 1-21, mettent en évidence l'évolution des fractures en fonction du débit d'injection et de l'orientation du plan d'anisotropie. Il est observé que suite à l'injection d'eau, les fissures commencent par disparaître, manifestant ainsi leur auto-colmatage.

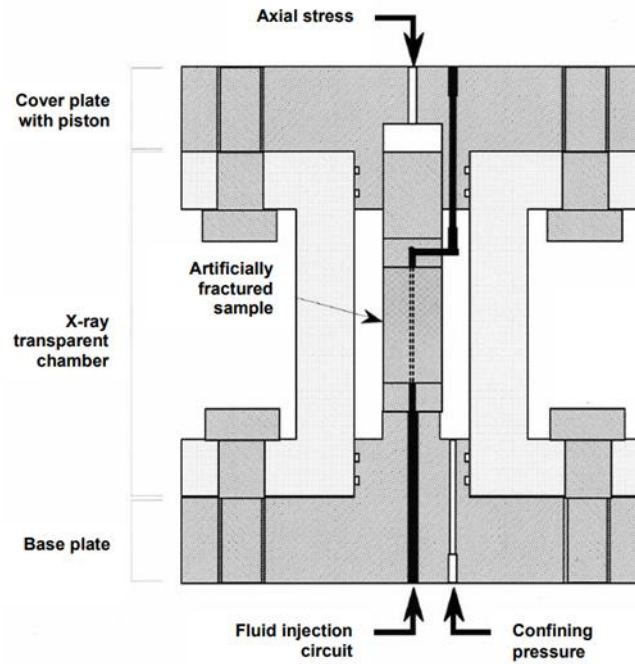


Figure 1-20 : Représentation schématique de la cellule de compression triaxiale (Auvray *et al.*, 2015).

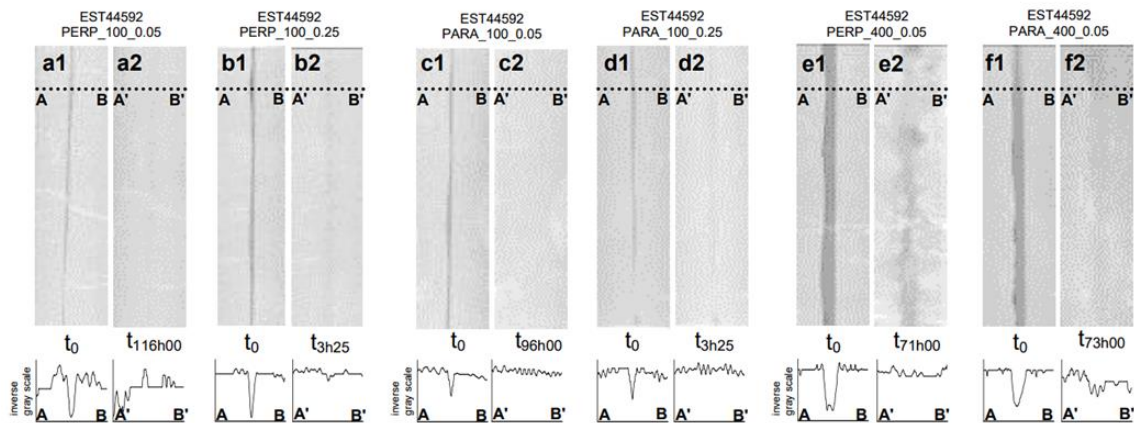


Figure 1-21 : Evolution des fractures (vue latérale & sonde linéaire, en négatif) en fonction du débit d'injection et de l'orientation du plan d'anisotropie (Auvray *et al.*, 2015).

Dans leurs recherches, Davy *et al.* (2007) ont entrepris une étude expérimentale approfondie, s'étendant sur une période de 6 mois, portant sur l'argilite callovo-oxfordienne macro-fissurée. L'objectif principal était de démêler l'impact sur la perméabilité de la roche de deux facteurs : d'une part, la charge mécanique, notamment l'ouverture et la fermeture des fissures, et d'autre part, l'infiltration de fluides chimiquement actifs, tels que l'eau. Les essais ont été effectués en mesurant la perméabilité aux fluides (argon et eau) sur des échantillons cylindriques artificiellement fracturés à l'aide d'un essai brésilien. Le confinement a été progressivement augmenté par des cycles de charge-décharge jusqu'à atteindre 17 MPa. Les résultats des

tests en régime permanent au gaz ont révélé que la perméabilité du gaz est principalement influencée par la fermeture des fissures, avec des valeurs de l'ordre de 10^{-13} à 10^{-16} m². De plus, cette perméabilité au gaz est fortement corrélée à la pression de confinement au cours des premières phases de chargement-déchargement. En revanche, les tests de perméabilité à l'eau (pulse test) ont donné des résultats très différents. Les valeurs de perméabilité mesurées variaient de 10^{-18} à 10^{-21} m², soit 2 à 8 ordres de grandeur de moins que celles des tests de perméabilité au gaz. Il est intéressant de noter que la perméabilité à l'eau diminue rapidement dès le début du test, indiquant une cinétique extrêmement rapide des phénomènes physico-chimiques régissant l'autocolmatage des macrofissures. Après une brève période d'injection, la perméabilité à l'eau chute à des valeurs proches de celles de la roche saine et devient indépendante des variations de pression de confinement. Cette étude a également mis en évidence que, contrairement aux tests de gaz, la durée de l'écoulement a un impact plus significatif sur les variations de perméabilité que la fermeture des fissures. Une autre observation importante est que l'échantillon soumis à un écoulement d'eau présente un gonflement, entraînant une fermeture supplémentaire des fissures. Ce gonflement n'a pas pour effet de décharger la zone de fissure mais crée plutôt une fermeture et une pression supplémentaires dans cette zone. Ainsi, la perméabilité de l'argilite à l'eau est étroitement liée à la fermeture cumulée des fissures, résultant de la combinaison de la fermeture due au confinement et celle induite par le gonflement dû à l'eau.

Dans cette même optique d'étudier le phénomène d'auto-colmatage, Zhang et Talandier (2023), dans leur travaux sur l'auto-colmatage des fractures dans les argilites indurées, ont observé que les fractures des argilites ont tendance à se refermer sous l'effet combiné de la compression mécanique et du gonflement induit par l'eau, réduisant ainsi leur perméabilité à l'eau à des niveaux proches de ceux de la roche intacte. Pour eux, cette réaction dépend de plusieurs facteurs, notamment la composition minéralogique, l'intensité des fractures, la contrainte de confinement et la durée de la charge. Notamment, l'auto-colmatage est plus efficace dans les argilites riches en argile que dans celles moins riches en cette composante, ainsi que dans les argilites riches en carbonates et les argilites sablonneuses.

Di Donna *et al.* (2022) ont mené une étude expérimentale sur l'auto-colmatage de l'argilite du COx en utilisant la tomographie aux rayons X. L'objectif était d'explorer l'impact de divers facteurs tels que les unités géologiques, la taille des discontinuités, les chemins hydrauliques et l'orientation du plan de stratification sur ce processus. Leurs observations révèlent deux phases dans l'auto-colmatage : une fermeture rapide de la fracture suivie d'un processus plus lent de réduction de la perméabilité. Ils constatent une forte corrélation avec les unités géologiques, les échantillons de l'unité argileuse montrant une réactivité supérieure à ceux de l'unité de transition. Le processus implique un pelage des fissures et un gonflement du matériau autour de celles-ci. La taille de la discontinuité influence également, les petites fractures se colmatant plus rapidement que les plus grandes. Ils soulignent l'importance du chemin hydraulique, les échantillons réagissant plus rapidement à l'eau liquide qu'à la vapeur. Enfin, l'orientation du plan de stratification affecte la réaction, les fissures de pelage étant alignées parallèlement au plan de stratification dans les échantillons coupés de cette manière.

Dans leurs recherches, Wang *et al.* (2022) ont élaboré un modèle innovant capable de décrire les comportements hydromécaniques de la zone d'endommagement excavée dans le projet français de stockage en profondeur des déchets nucléaires. Leur étude, qui combine simulation numérique et tests expérimentaux d'auto-colmatage, a démontré que la zone connectée à la fracture pouvait se sceller par hydratation. Les résultats obtenus suggèrent que l'application de ce nouveau modèle peut être étendue à l'analyse des comportements hydromécaniques d'autres argilites similaires à l'argilite du COx, telles que l'argilite à Opalinus et l'argilite à Boom.

L'impact thermique sur le mécanisme d'auto-colmatage a été étudié à travers l'analyse des relations entre la conductivité hydraulique, la perméabilité intrinsèque et la température. Des observations ont noté une légère augmentation de la conductivité hydraulique avec l'élévation de la température (Chen *et al.*, 2013 ; Zhang, 2018). Dans une étude menée par Chen *et al.* (2013) sur l'argile de Boom, qu'elle soit fissurée ou non, l'effet de différentes températures sur la conductivité hydraulique et la perméabilité intrinsèque a été examiné en utilisant trois solutions salines. Les résultats ont démontré que la température n'avait aucun impact défavorable sur l'auto-colmatage de l'argile de Boom. Des conclusions analogues ont été rapportées dans des recherches portant sur l'argilite du COx (Delage *et al.*, 2012 ; Monfared *et al.*, 2012 ; Zhang, 2018). Dans chaque essai réalisé par Chen *et al.* (2013), la perméabilité intrinsèque demeure presque constante pour différentes températures, comme illustré dans la Figure 1-22(a). Pour ces auteurs, cela indique que l'accroissement de la conductivité hydraulique avec la température (Figure 1-22(b)) est exclusivement attribuable à la diminution de la viscosité de l'eau ; que la structure poreuse des échantillons fracturés n'est pas altérée par la température et que les fissures scellées ne se rouvrent pas lors du chauffage.

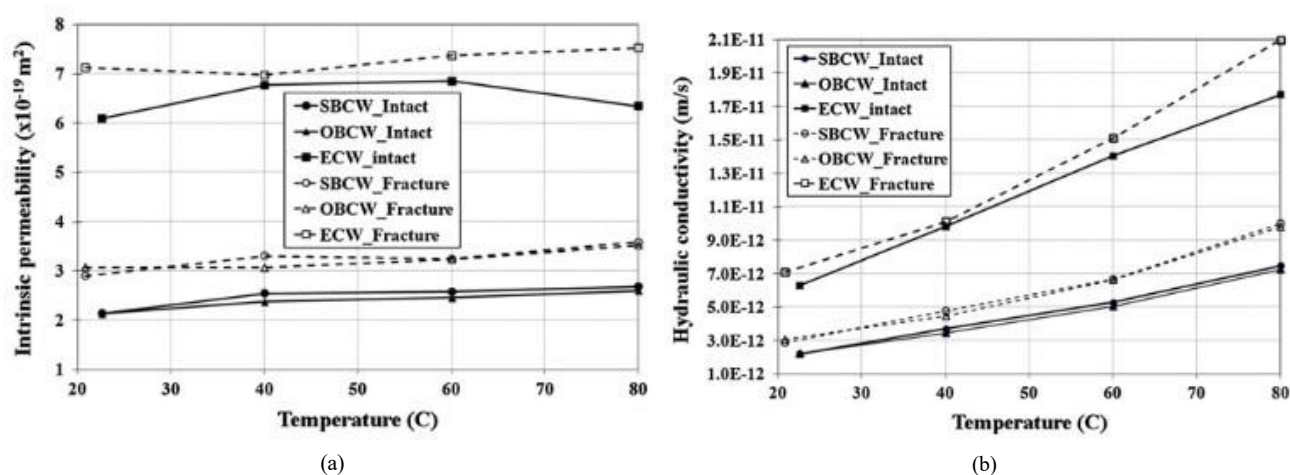


Figure 1-22 : (a) Perméabilité intrinsèque en fonction de la température de l'argile de Boom ; (b) conductivité hydraulique en fonction de la température de l'argile de Boom (Chen *et al.*, 2013).

En synthèse, l'auto-colmatage de la zone endommagée (EDZ) représente un processus complexe, intimement lié aux interactions thermiques, hydromécaniques et à long terme. La capacité des argilites à s'auto-colmater a été confirmée par plusieurs auteurs (Bastiaens *et al.*, 2007 ; Bock *et al.*, 2010 ; De La Vaissière *et al.*, 2015 ; Van Geet *et al.*, 2008 ; Zhang et Talandier, 2023). Cependant, il existe peu d'informations quant au processus d'auto-colmatage dans des conditions impliquant des températures et des fluides variables, ainsi que sur la visualisation tridimensionnelle de ces fissures pendant le processus d'auto-colmatage. Dans cette thèse, une partie des travaux sera consacrée à l'exploration de l'impact de ces paramètres en combinant mesure de perméabilité et visualisation 3D des fissures par tomographie aux rayons X.

1.2.4. L'argilite du COx dans le cadre du centre de stockage des déchets radioactifs

Les argilites du Callovo-Oxfordien sont présentes au sein du vaste bassin sédimentaire parisien, qui a été le sujet de nombreuses études de prospection, notamment dans les domaines du pétrole et du charbon, ce qui a permis d'acquérir une connaissance approfondie de cette formation géologique. Les argilites du Callovo-Oxfordien dans la région sud de la Meuse présentent plusieurs caractéristiques remarquables (Delay *et al.*, 2007). Avec une épaisseur de 100 mètres, elles couvrent une vaste superficie, et le bassin parisien n'a pas connu de mouvements tectoniques significatifs depuis 365 millions d'années. D'après

l'Andra (2005), l'argilite du Callovo-Oxfordien est exempte de failles, ce qui lui confère une perméabilité très faible et limite considérablement les circulations d'eau. Cela contraste avec certaines autres formations argileuses, telles que celle du Mont Terri, qui peuvent comporter des failles ou des macro-fractures naturelles. Les campagnes de géophysique ont particulièrement étudié cette caractéristique. Sur les 200 km² explorés au nord et au nord-ouest du laboratoire, aucune faille n'a été détectée dans la zone étudiée. Les seules failles connues, situées en dehors de cette zone, sont la faille de la Marne (direction N-NO) et le fossé de Gondrecourt (direction N-E), formant les limites ouest, sud et est du secteur. Aucun des forages réalisés, totalisant 2 300 mètres de longueur, n'a traversé de faille secondaire dans le Callovo-Oxfordien. Seules quelques microstructures, d'au plus quelques centimètres, ont été rencontrées, toutes colmatées et ne modifiant pas les propriétés de confinement de la couche.

De plus, cette couche géologique est enfouie à une profondeur de plus de 400 mètres, ce qui la préserve des phénomènes géologiques tels que l'érosion ou la glaciation (évitant ainsi les perturbations des flux hydrauliques souterrains induites par les changements en surface sur plus d'un million d'années (Teles et al., 2007)), tout en restant à une profondeur raisonnable pour la construction d'un centre de stockage.

Les recherches menées par l'Andra depuis les années 90 ont mis en évidence plusieurs points importants (Delay et al., 2007) :

- L'absence de sismicité ainsi qu'un contexte géodynamique stable assurent la stabilité géologique et hydrodynamique de la région sur des durées très longues, s'étendant sur plusieurs millions d'années.
- L'excavation et la construction d'installations sont réalisables sans rencontrer de problèmes majeurs.
- L'absence de ressources naturelles telles que des minerais ou des aquifères à proximité.

Les caractéristiques intrinsèques des argilites du Callovo-Oxfordien en font une formation géologique particulièrement adaptée pour le stockage des déchets radioactifs. Leur faible perméabilité et leur faible coefficient de diffusion ralentissent le transfert des radionucléides vers le milieu environnant, que ce soit par diffusion ou par advection. De plus, le fort potentiel de rétention des argilites du Callovo-Oxfordien (Kedziorek et al., 2007 ; Tournassat et al., 2007) constitue un avantage majeur pour prolonger la rétention des radionucléides localement. La capacité élevée des argilites à limiter la migration des éléments radioactifs est également un élément essentiel pour garantir la sûreté du stockage, en évitant notamment l'évacuation d'éléments potentiellement dangereux, tels que les gaz de corrosion.

1.3. Dynamique du stockage profond

1.3.1. Température

La majorité considérable des colis de déchets, notamment ceux de type haute activité (HA), présentent un caractère exothermique dû à l'émission de rayonnements à haute énergie. Ainsi, lors de l'installation des colis HA, on constate une élévation graduelle de la température. Cet événement transitoire se traduit par l'atteinte d'une température maximale suivie d'une décroissance en lien avec la désintégration radioactive des déchets (Andra, 2005).

Selon le rapport de l'Andra (2005), l'évolution thermique du site de stockage est envisagée à différentes échelles : les cellules de stockage et les premiers mètres dans la couche Callovo-Oxfordienne qui les

entoure (champ proche), d'une part, et plus généralement, à l'échelle des formations géologiques (champ lointain). Dans le rapport de l'Andra (2005), on note qu'au sein des cellules de stockage, les températures maximales sont atteintes en quelques années dans le cas des déchets de moyenne activité à vie longue (MA-VL) les plus exothermiques (70°C), et après 10 à 20 ans dans le cas des déchets de haute activité (HA) (90°C). À l'échelle des colis, les températures deviennent homogènes avec le temps : en 500 ans dans le cas des colis de stockage de déchets de moyenne activité à vie longue (MA-VL) où elles sont d'environ 35°C à ce moment, en 1 000 ans dans le cas des colis de déchets de haute activité à vie courte (HA-VC) (40 à 45°C) et en 3 000 ans dans les colis de déchets de haute activité à vie longue (HA-VL) (40 à 45°C).

Il ressort également de ce rapport qu'à l'échelle des zones du site de stockage, l'homogénéisation des températures prend plus de temps. 2 000 ans dans le cas des zones de déchets de moyenne activité à vie longue (MA-VL) (25°C), 3 000 ans dans le cas des zones de déchets de haute activité à vie courte (HA-VC) (30 à 35°C) et 10 000 ans dans le cas de de haute activité à vie longue (HA-VL) (30 à 35°C). Ces niveaux de température diminuent ensuite, et la durée de la charge thermique dans le site de stockage et la formation Callovo-Oxfordienne est limitée à quelques milliers d'années. Ces périodes de temps sont très courtes par rapport aux processus thermiques qui guident l'évolution naturelle des formations sédimentaires qui s'étendent sur plusieurs millions à plusieurs dizaines de millions d'années.

Les augmentations de température ne génèrent que des gradients thermiques modérés (Andra, 2005). Les plus hauts gradients (de l'ordre de plusieurs dizaines de °C.m⁻¹) sont atteints dans les cellules de stockage des déchets haute activité (HA) au cours des premières années après l'emplacement des colis, mais ils diminuent rapidement à mesure que les températures dans les zones de stockage deviennent homogènes. Ils sont plus faibles dans la couche Callovo-Oxfordienne (quelques °C.m⁻¹) et se limitent à la proximité immédiate des cellules (de quelques décimètres à quelques mètres) sur une période d'environ 100 ans. Comme dans le cas du site de stockage, ils diminuent rapidement à mesure que les températures deviennent homogènes. La Figure 1-23 nous donne par exemple, l'évolution de la température dans une zone de dépôt de déchets de haute activité à vie courte.

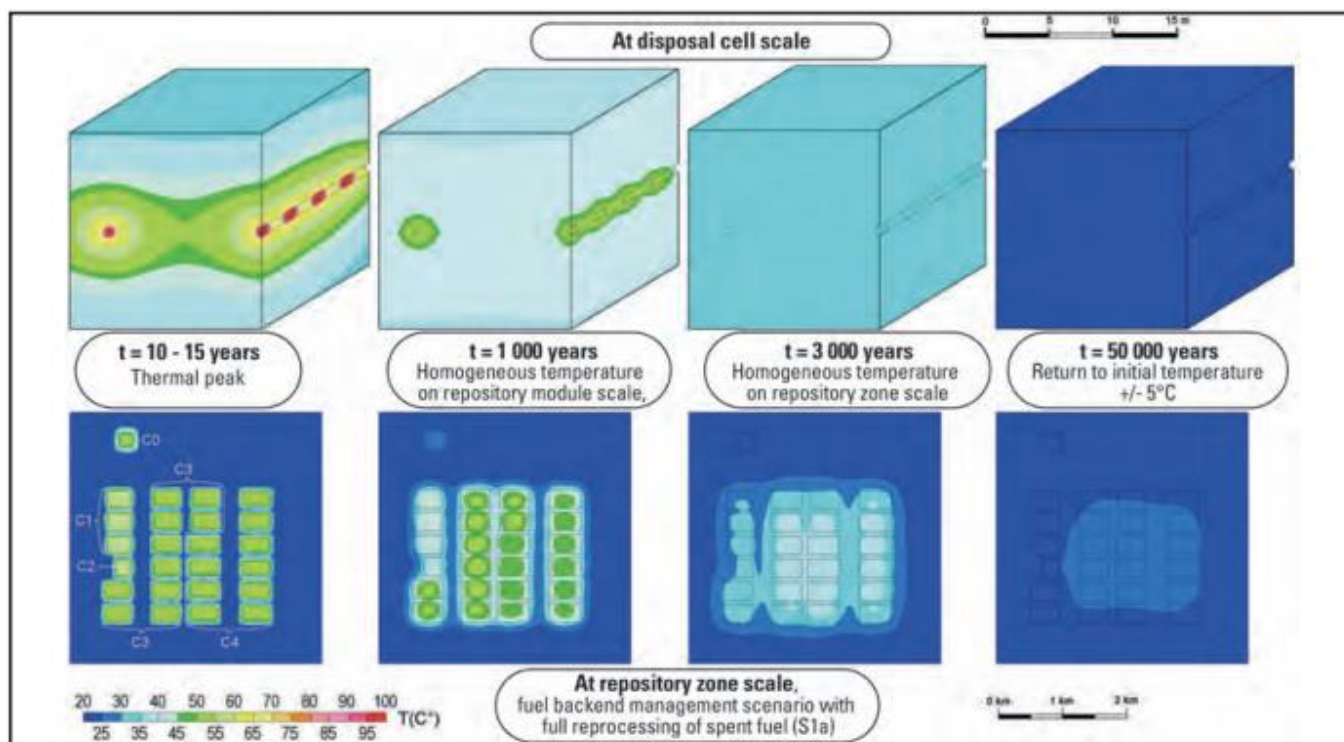


Figure 1-23 : Évolution de la température dans une zone de dépôt de déchets de haute activité à vie courte, en coupe transversale et horizontalement (Andra, 2005).

1.3.2. Gaz

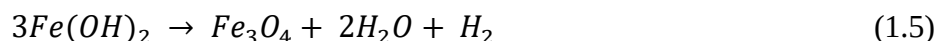
1.3.2.1 Origine

L'une des évolutions géochimiques susceptibles de se produire tout au long de la durée de vie du stockage, et qui peut avoir un impact sur le stockage lui-même ainsi que sur son environnement géologique, est la production de gaz. Divers mécanismes, tels que la corrosion des aciers, l'activité des micro-organismes, la radiolyse de l'eau et des matières organiques, ainsi que la radiolyse alpha, peuvent conduire à cette production de gaz. On peut également noter la présence de faibles quantités de radionucléides à l'état gazeux, bien que ces quantités soient inférieures à celles d'hydrogène gazeux produites. L'hydrogène est principalement issu de la corrosion des matériaux métalliques dans des conditions anaérobies, suite à la fermeture des galeries.

Les taux de corrosion observés sont de faible magnitude, de l'ordre de $2 \text{ à } 3 \mu\text{m.an}^{-1}$, et ce phénomène perdure pendant de nombreuses années, couvrant une période allant de quelques dizaines d'années jusqu'à environ 10^5 ans (Didier, 2012).

La production d'hydrogène est principalement attribuée à la corrosion des aciers non alliés qui composent le surconteneur des déchets vitrifiés ainsi que le chemisage responsable du soutien des alvéoles. Pour les déchets à haute activité, la production d'hydrogène atteint son apogée sur une période d'environ 5000 ans. Quant aux déchets à moyenne activité et vie longue, la production d'hydrogène provient de la corrosion de divers composants métalliques présents dans les déchets eux-mêmes et certains colis primaires, ainsi que de la radiolyse des matières organiques, avec des proportions significatives variant en fonction de la nature spécifique des déchets (Andra, 2005). À la fermeture des alvéoles, l'oxygène est consommé par les divers composés réducteurs présents dans les alvéoles de déchets, tels que le fer métallique, la pyrite, la sidérite, et le milieu devient ainsi réducteur. Cette transition des conditions d'oxydo-réduction se produit assez rapidement après la fermeture du stockage (moins de dix ans). La

corrosion des aciers dans des conditions réductrices est régie à un pH inférieur à 8 pour $P_{H_2} = 1$ atm (alvéoles HA). Les ions hydroxyles engendrés peuvent partiellement réagir avec les ions bicarbonates présents dans la formation argileuse, conduisant ainsi à la formation de carbonates, tandis qu'une précipitation de sidérite pourrait être observée à l'interface externe du conteneur. Une fraction supplémentaire peut réagir avec les ions ferreux afin de produire de l'hydroxyde de fer, un composé métastable qui, dans des conditions dépourvues d'oxygène, réagira ultérieurement pour donner naissance à de la magnétite, selon la réaction décrite par Schikorr (Truche, 2009).



Ainsi on obtient la réaction de corrosion globale qui produit à la fois de l'hydrogène gazeux et de la magnétite :



1.3.2.2 Effet de la production de gaz

L'hydrogène gazeux, produit en continu pendant une période d'environ cent mille ans, entraîne une augmentation de la pression des gaz à l'intérieur des ouvrages de stockage. En tant que matériau présentant une perméabilité extrêmement faible, l'argilite exerce une forte limitation sur la migration du gaz à travers la couche géologique. Cependant, la formation d'une bulle de gaz à l'interface entre les colis de déchets et l'argilite peut entraîner une désaturation partielle de l'argilite et, dans certains cas, provoquer des dommages mécaniques tels que la formation de micro-fissures au sein de la structure argileuse (Dridi, 2005). Dans un premier temps, lorsque la quantité de gaz produite est faible, celui-ci est entièrement dissous par l'eau présente sur le site, et son transport est régi par un mécanisme de convection/diffusion. Ensuite, en raison de la faible solubilité de l'hydrogène dans l'eau et de la poursuite de sa production, la pression du gaz devient suffisamment élevée pour surmonter les forces capillaires associées aux pores de plus grande taille qui sont connectés, ce qui entraîne l'établissement d'un écoulement diphasique et la pénétration du gaz dans les pores. La pression en question est définie comme étant la pression d'entrée. Si la pression du gaz continue d'augmenter, elle peut entrer en concurrence avec les forces responsables de la cohésion entre certaines particules d'argile, engendrant ainsi la formation de micro-fissures. Enfin, lorsque la pression atteint des niveaux élevés, des ruptures peuvent survenir dans le milieu. Ce dernier mécanisme se manifeste lorsque la pression dépasse la pression lithostatique, fixée à 120 bars. La présence d'une phase gazeuse, soumise à une certaine pression, peut donc provoquer des dommages à la roche de couverture, accélérer la libération de radionucléides gazeux vers la biosphère, entraîner la contamination des phases liquides et engendrer la libération de gaz inflammables en surface, tels que l'hydrogène et le méthane.

D'après les simulations effectuées dans le cadre de la thèse de Boulin (2008), la pression maximale en hydrogène dans les alvéoles de stockage des déchets à haute activité (HA) est estimée à 80 bars. Étant donné que la production de gaz de corrosion est prépondérante pour ces déchets, on peut considérer cette pression comme la valeur maximale attendue dans le stockage. Pour les alvéoles de déchets à moyenne activité à vie longue (MA-VL), la pression attendue est de 70 bars. Les pressions maximales sont atteintes au bout d'une période de 5000 ans pour les déchets à haute activité (HA) et de quelques centaines d'années pour les déchets à moyenne activité à vie longue (MA-VL). Étant donné que la contrainte verticale naturelle imposée à la couche du Callovo-Oxfordien atteint 120 bars, le phénomène de fracturation, qui se manifeste

pour des pressions dépassant cette pression lithostatique, peut être écarté. Ainsi, l'hydrogène gazeux produit se déplacera au sein de la couche géologique par dissolution et convection diffusion ; écoulement bi-phasique ; et micro-fissuration.

De manière générale, Besnus (1991) expose les conséquences les plus importantes de la formation de la phase gazeuse sur le stockage des déchets radioactifs, qui sont les suivantes :

- Une perturbation du régime hydrogéologique peut survenir en raison de l'expansion d'une poche de gaz, ce qui peut entraîner des différences dans la migration des radionucléides par convection et diffusion par rapport aux estimations basées uniquement sur l'équilibre du milieu et l'environnement naturel. Par conséquent, il est possible qu'un front d'eau contaminée puisse se former.
- La formation de fissures peut survenir en champ proche, engendrant des déformations et des voies préférentielles pour la migration des radionucléides, en fonction des pressions atteintes.
- En cas de défaut d'étanchéité : l'existence d'un chemin préférentiel pour l'échappement du gaz peut représenter un risque d'explosion et de contamination des populations.
- En cas d'intrusion : une intrusion humaine près de la barrière géologique ou d'un puits mal scellé, après la fermeture de l'installation, peut entraîner des risques d'explosion et de contamination.

1.4. Objectif de la thèse

Au cours du stockage de déchets radioactifs, la roche argileuse est soumise à plusieurs contraintes, telles que la température, le transfert de fluides, l'endommagement résultant des activités de creusement, etc. Par exemple, après la fermeture du stockage, l'eau provenant de la formation géologique réinvestira l'environnement du stockage, en resaturant notamment les argilites qui bordent les alvéoles et les galeries, ainsi que les bétons de revêtement. La resaturation de l'argilite est susceptible de colmater les brèches se trouvant dans l'EDZ. Ce processus d'auto-colmatage revêt une importance primordiale pour la roche endommagée car elle lui permet de recouvrer ses propriétés naturelles (mécaniques et hydrauliques) afin de mieux confiner les déchets radioactifs. Par ailleurs, l'augmentation de la pression du gaz, qui s'opère de manière progressive étant donné la lenteur de la production de gaz et la nécessité d'avoir une présence d'eau liquide en contact avec les surfaces métalliques pour amorcer les processus de corrosion, va induire sa migration à travers des matériaux complètement saturés. Ce processus est régi par un paramètre de transport crucial, à savoir la pression d'entrée qui représente le seuil à partir duquel le gaz peut pénétrer un milieu poreux entièrement saturé, ainsi que par la présence de fractures dans l'EDZ.

Comprendre le comportement de la roche face à ces contraintes à court et à long terme revêt donc une importance majeure dans le concept du stockage en profondeur. Pour atteindre ces objectifs, nous allons d'abord présenter les mécanismes de transfert dans les milieux poreux et plus particulièrement au sein de l'argilite du Callovo-Oxfordien. Par la suite, le processus d'auto-colmatage de l'argilite du COx sera étudié expérimentalement. Plus précisément, les expériences d'auto-colmatage seront réalisées dans une cellule triaxiale en PEEK, à différentes températures (20 °C à 80 °C) pour étudier l'impact de ce paramètre, sur des éprouvettes cylindriques initialement et artificiellement fracturées. La cellule en PEEK permet une visualisation des fractures par Tomographie 3D aux rayons X, et donc une caractérisation de la taille et de la forme des fractures. Le fluide injecté sera de l'eau chimiquement équilibrée de l'Andra. L'impact de l'injection de gaz sur ce processus sera également étudié. Les volumes et pressions de fluides seront contrôlées, permettant ainsi une mesure en continu de la perméabilité à l'eau et au gaz. Dans un second

temps, il s'agira également d'étudier expérimentalement l'impact de l'endommagement du matériau sur la perméabilité au gaz. Le paramètre important dans ce processus qu'est la pression d'entrée de gaz devra être estimé dans le cadre de ces expériences. Ces expériences seront réalisées dans des cellules triaxiales sous chargement déviatorique et la perméabilité au gaz sera mesurée en continu. Deux types de cellules triaxiales seront utilisés, une cellule en PEEK permettant une analyse des fissures induites par tomographie 3D aux rayons X, et une cellule classique en acier permettant une mesure en continu des déformations.

Conclusion

Le présent chapitre établit les fondements nécessaires à la compréhension du stockage profond de déchets radioactifs. Les aspects fondamentaux du stockage géologique profond sont explorés, mettant en lumière le principe sous-jacent, les différentes catégories de déchets radioactifs et l'importance cruciale du projet européen EURAD. En étudiant les propriétés des argiles, les caractéristiques du milieu poreux sont identifiées, notamment les particularités de l'argilite du Callovo-Oxfordien dans le contexte spécifique du centre de stockage des déchets radioactifs. De plus, la dynamique du stockage profond est examinée, en abordant des facteurs clés tels que la température et les gaz.

Enfin, l'objectif principal de la thèse est défini, visant à approfondir la compréhension du transfert de fluides dans ce milieu complexe. Dans la transition vers le chapitre suivant, l'attention est orientée vers le transfert de fluides en milieu poreux, mettant particulièrement l'accent sur l'argilite du Callovo-Oxfordien. Cette analyse approfondie permettra de mieux appréhender les mécanismes de transfert multiphasique ainsi que les lois générales qui les régissent, dans le contexte spécifique du stockage des déchets radioactifs.

CHAPITRE 2. : TRANSFERT EN MILIEUX POREUX

Introduction

Dans le cadre de l'approfondissement de la compréhension de la problématique des fluides dans un centre de stockage de déchets radioactifs, il est essentiel de rappeler les principes régissant le transfert de fluides au sein d'un milieu poreux. Ce chapitre portera donc sur les processus de transfert au sein des milieux poreux, qui jouent un rôle déterminant dans le comportement des argilites utilisées comme barrières géologiques. Il introduira les lois d'écoulement régissant la perméation à travers les milieux poreux, mettant en évidence des phénomènes tels que l'effet Klinkenberg et l'impact de la saturation, ainsi que les méthodes expérimentales servant à la détermination des propriétés de la perméabilité. Ensuite, les phénomènes de transfert au sein d'une phase seront exposés, en analysant la diffusion dans la phase liquide et la phase gazeuse, des processus cruciaux pour comprendre les mécanismes de transport dans les milieux poreux. Puis, les concepts de pression d'entrée et de pression de percée capillaire seront examinés, avec une exploration des méthodes de caractérisation qui leur sont associées. Enfin, le transfert de gaz dans l'argilite du Callovo-Oxfordien sera étudié, en se penchant sur l'entrée du gaz dans cette formation géologique saturée, ainsi que sur l'impact de l'environnement propre au stockage profond sur ces processus de transfert.

2.1. Lois d'écoulement : la perméation

La perméation est le phénomène caractérisé par le déplacement global de la phase gazeuse ou liquide, induit par les forces visqueuses. Ces forces visqueuses sont directement liées au gradient de pression existant au sein de la phase concernée. La compréhension de la perméation au sein d'un milieu poreux découle de la macroscopisation des lois de Navier-Stokes, de l'incompressibilité, ainsi que de la condition d'adhérence aux parois, établies au niveau microscopique. Du fait de la production d'hydrogène à la surface des conteneurs dans le site de stockage, un gradient de pression se forme au sein de la couche argileuse, susceptible de provoquer la migration du fluide par perméation (également connue sous le nom d'advection). Il s'agit d'un mode de transport du fluide qui, sous l'effet d'un gradient de pression, se déplace à travers un réseau connecté. Ce mode de transport est décrit par la loi de Darcy, qui s'applique à un milieu poreux isotrope traversé par un écoulement à faible vitesse. Cette loi établit une corrélation entre la vitesse du fluide et la différence de pression appliquée de part et d'autre du matériau poreux, ou plus généralement au gradient de pression à l'intérieur du matériau.

Dans le cadre d'un milieu poreux saturé par un liquide, la relation entre le gradient de pression et la densité du flux de liquide correspondante, notée q_l , est exprimée de la manière suivante :

$$q_l = - \frac{k_\infty}{\mu_l} \cdot \frac{dP}{dz} \quad (2.1)$$

Avec q_l représentant la densité de flux de liquide ou la vitesse de Darcy (m.s^{-1}), P la pression du liquide (Pa), μ_l la viscosité dynamique du liquide (Pa.s), et k_∞ la perméabilité intrinsèque de la matrice poreuse (m^2).

Lorsqu'on se trouve en régime permanent, q_l est constant le long de z . Ainsi, on obtient l'expression du débit de liquide suivante :

$$Q_l = - \frac{S \cdot k_\infty}{\mu_l e} \cdot (P_1 - P_2) \quad (2.2)$$

Le débit de liquide (Q_l) est exprimé en mètres cubes par seconde (m^3/s), la section de l'échantillon (S) en mètres carrés (m^2), et l'épaisseur de l'échantillon (e) en mètres (m). P_1 et P_2 sont les pressions constantes respectivement en amont et en aval.

La perméabilité intrinsèque à l'eau, notée k_∞ , peut être donc déduite de la formule (2.2). Elle est déterminée par l'équation suivante :

$$k_\infty = \frac{Q_l \cdot \mu_l \cdot e}{S \cdot (P_1 - P_2)} \quad (2.3)$$

En présence d'un échantillon sec ou présentant un taux de saturation quelconque, la loi de Darcy régissant le flux de gaz est formulée comme suit :

$$q_g = - \frac{k_a}{\mu_g} \cdot \frac{dP}{dz} \quad (2.4)$$

Avec μ_g désignant la viscosité dynamique du gaz (Pa.s), P représentant la pression du gaz (Pa) et k_a (m^2) la perméabilité apparente du gaz de la matrice poreuse. Cette loi de Darcy se traduit par un flux molaire N_g ($\text{mol.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$), défini, dans le cas d'un gaz parfait, par l'équation suivante :

$$N_g = \frac{P_g}{RT} \cdot q_g \quad (2.5)$$

En régime permanent, le flux molaire N_g reste constant le long de z . En procédant à l'intégration, nous obtenons l'expression suivante pour le calcul du flux molaire :

$$N_g = \frac{k_a}{2RT\mu_g e} \cdot (P_1^2 - P_2^2) \quad (2.6)$$

Dans cette équation, μ_g est la viscosité dynamique du gaz (Pa.s), e est la longueur de l'échantillon (m), et P_1 et P_2 sont les pressions interstitielles du gaz en amont et en aval (Pa).

À partir de l'équations (2.6) et de la loi des gaz parfait, on obtient la nouvelle expression pour le coefficient de perméabilité apparent avec Q_g et S qui représentent respectivement le débit volumétrique du gaz (m^3/s) et la surface de la section transversale de l'échantillon (m^2).

$$k_a = \frac{2\mu_g Q_g e P_1}{S \cdot (P_1^2 - P_2^2)} \quad (2.7)$$

Le phénomène de perméation est marqué par un coefficient de perméabilité intrinsèque, désigné par k_∞ , qui est conditionné par la morphologie et les dimensions caractéristiques de l'espace poreux, et qui demeure indépendant de la nature du fluide.

2.1.1. Effet Klinkenberg

La relation de Darcy appliquée au gaz (2.8) est valable uniquement lorsque la dimension des pores est considérable par rapport au libre parcours moyen des molécules λ_m , représentant la distance moyenne parcourue par une molécule avant de rencontrer une autre (Boulin, 2008 ; Didier, 2012) :

$$\lambda_m = \frac{3}{2} \cdot \frac{\mu_g}{P_g} \cdot \sqrt{\frac{\pi RT}{2M}} \quad (2.8)$$

λ_m est le libre parcours moyen des molécules gazeuses (m) ; R la constante des gaz parfaits (8,314 J.K⁻¹.mol⁻¹) ; T la température (K) et M la masse molaire du gaz (kg.mol⁻¹).

Si la distance λ_m est de l'ordre de la taille des pores, les molécules de gaz ont une forte probabilité d'interagir à la fois entre elles et avec les parois des pores. Plus les pores sont petits, plus les interactions molécule-parois sont importantes, ce qui entraîne une augmentation de la vitesse de déplacement des molécules due aux chocs avec les parois. L'existence de ce phénomène contribue à accroître le flux de gaz en raison de l'effet de glissement, qui diminue à mesure que la pression augmente, car le libre parcours moyen des molécules diminue également avec la pression. Lorsque les pressions deviennent "infinies", le gaz se comporte comme un liquide, et l'effet de glissement le long des parois devient négligeable. Par conséquent, la loi de Darcy pour un gaz est ajustée en utilisant une perméabilité apparente k_a . Cet effet, connu sous le nom d'effet Klinkenberg, se présente lorsqu'une faible pression de gaz est appliquée, c'est-à-dire lorsque le libre parcours moyen des molécules est élevé ou lorsque la taille des pores est réduite, comme cela a été constaté avec le CO₂ (Wu *et al.*, 1998). La perméabilité apparente est ainsi formulée en fonction de la perméabilité intrinsèque de la matrice poreuse et du coefficient de Klinkenberg, noté b_k (Klinkenberg, 1941) :

$$k_a = k_\infty \cdot \left(1 + \frac{b_k}{P_g}\right) \quad (2.9)$$

En prenant en considération l'effet Klinkenberg, l'équation de Darcy pour un gaz peut être exprimée de la manière suivante :

$$q_g = - \frac{k_a}{\mu_g} \cdot \overrightarrow{\text{grad} P_g} \quad (2.10)$$

2.1.2. Effet de la saturation

Dans le cas d'un système binaire comprenant deux fluides (par exemple gaz et liquide), il est nécessaire de prendre en compte la saturation S_r du milieu. Cette grandeur diffère de la teneur en eau w (1.2). Le degré de saturation en eau est la proportion d'eau présente dans les vides. Elle peut être définie par :

$$S_r = \frac{V_w}{V_v} \times 100 \quad (2.11)$$

Les pores se remplissent différemment en fonction de leur taille. Les plus petits pores contiennent principalement le liquide (fluide mouillant), tandis que les plus grands pores sont remplis de gaz (fluide non mouillant). Ainsi, les deux fluides s'écoulent dans des pores différents et développent leur propre réseau d'écoulement. La structure poreuse et la saturation du matériau ont donc un impact sur les perméabilités à l'eau et au gaz. Il est donc indispensable d'avoir une compréhension de la distribution et de la saturation du matériau afin de saisir les résultats des essais de transport. Étant donné que chaque phase a son propre réseau d'écoulement, son mouvement peut être décrit par une loi de Darcy :

$$q_i = - \frac{k_i(S_r)}{\mu_i} \cdot \overrightarrow{\text{grad}P_i} = - \frac{k_\infty \cdot k_{ri}(S_r)}{\mu_i} \cdot \overrightarrow{\text{grad}P_i} \quad (2.12)$$

Où $k_{ri} = \frac{k_i}{k_\infty}$ est la perméabilité relative de la phase i (i étant la phase gaz ou liquide).

On fait ainsi référence à la perméabilité relative au gaz k_{rg} et à la perméabilité relative au liquide k_{rl} . Ces grandeurs adimensionnelles varient entre 0 et 1. Si l'ensemble des pores étaient remplis de gaz, alors k_{rg} serait égal à 1, et la perméabilité observée serait équivalente à la perméabilité intrinsèque du matériau, de même pour le liquide. Il est essentiel de prendre en compte deux paramètres : la perméabilité à l'eau et la perméabilité au gaz. Pour le liquide, qui est contraint de s'écouler dans les pores les plus étroits, sa perméabilité relative est généralement inférieure à celle du gaz. En appliquant la relation précédente, on suppose que le déplacement d'une phase n'influence pas l'autre, une hypothèse qui paraît justifiée étant donné la disparité de viscosité entre les deux phases. À titre d'exemple, pour l'eau et l'hydrogène gazeux, le rapport entre les viscosités dynamiques à 25°C est de 0,01. Cela signifie que le transfert de gaz s'effectue sans induire de manière visqueuse le déplacement de la phase liquide. Pour décrire la perméabilité relative gazeuse en fonction de la saturation, Grgic *et al.* (2006) ont proposé l'expression suivante dans leur étude inspiré des travaux de Van Genuchten (1980) :

$$k_{rl} = S_r^b \cdot \left(1 - \left(1 - S_r^{\frac{1}{a}} \right)^a \right)^2, \quad k_{rg} = 1 - k_{rl} \quad (2.13)$$

Où S_r est le degré de saturation effectif en eau, b et a sont des paramètres à définir expérimentalement. Dans les modèles de Van Genuchten et Mualem (Van Genuchten, 1980), la valeur par défaut de b est égale à 0,5 et a est compris entre 0 et 1. Les paramètres du modèle de Van Genuchten pour l'argilite de Bure suivant son état d'endommagement ont été identifiés dans la thèse de M'Jahad (2012) à partir de résultats expérimentaux.

Didier (2012) dans ses travaux ressort que k_{rg} diminue fortement près d'une saturation en eau proche de 1. Cela démontre que dans un milieu poreux fortement saturé, la détermination du coefficient de perméabilité relative au gaz devient complexe. La plus petite variation de saturation de l'échantillon entraînera une altération significative de la valeur de k_{rg} .

L'effet Klinkenberg est également présent dans le réseau par lequel le gaz se déplace. La perméabilité apparente k_a s'exprime donc selon la forme suivante :

$$k_a = k_{p \rightarrow \infty} \cdot \left(1 + \frac{b_k}{P_g} \right) \quad (2.14)$$

Où $k_{p \rightarrow \infty}$ et b_k dépendent maintenant de S_r . On ne peut donc plus parler véritablement du coefficient de perméabilité intrinsèque, mais plutôt de la perméabilité effective $k_{p \rightarrow \infty}$, notée k_{eff} .

2.1.3. Détermination expérimentale

L'étude du concept de perméation a été entreprise depuis de nombreuses années, et diverses techniques ont été développées pour déterminer les perméabilités. Il existe d'abord la méthode en régime permanent qui consiste à établir un gradient de pression entre les deux faces d'un échantillon, suivi de la mesure du débit de fluide en sortie après atteinte de la stabilité. Cette méthode a déjà été utilisée par de nombreux auteurs par le passé (Boulin, 2008 ; Didier, 2012 ; Grgic *et al.*, 2023) et elle présente de résultats avec une précision satisfaisante. Elle a été choisie pour nos propres travaux, qui sont détaillés dans le CHAPITRE 4.

Une autre méthode fréquemment employée est la technique du "pulse test" qui s'appuie sur le régime transitoire (Dana et Skoczylas, 1999 ; Hejtmánek *et al.*, 2003). Cette méthode consiste à placer l'échantillon entre deux réservoirs et à lui appliquer une pression fluide homogène. Par la suite, une variation de pression est imposée dans l'un des réservoirs, et la perméabilité intrinsèque est déterminée en mesurant l'augmentation de pression dans l'autre réservoir. Cette méthode offre l'avantage d'être plus rapide que les essais en régime permanent "classiques", cependant, l'analyse des résultats s'avère souvent assez complexe (Didier, 2012).

2.2. Transfert au sein d'une phase

Au sein des phases gazeuse et liquide, le transport des éléments est régi par deux phénomènes distincts : la convection et la diffusion. La convection est liée au mouvement global du fluide, qu'il soit gazeux ou liquide, entraînant ainsi le déplacement des éléments qui s'y trouvent. En revanche, la diffusion correspond au déplacement propre de l'élément par rapport aux autres constituants de la phase. Par exemple, dans la phase gazeuse, le flux total d'un élément est la somme du transport advectif et du transport diffusif :

$$\vec{N}_i^T = x_i \cdot \vec{N}^\mu + \vec{N}_i^D \quad (2.15)$$

Le flux advectif N^μ (mol/m²/s) est réparti de manière équimolaire entre les différents constituants. Le composant i , caractérisé par la fraction molaire x_i , est transporté par la vitesse globale du fluide, représentant ainsi le terme convectif. Le flux diffusif N_i^D est lié au mouvement différencié du composant i par rapport au flux global du gaz. L'expression de ce flux diffusif dépend donc du choix entre l'approche massique ou molaire pour définir la vitesse moyenne du fluide, comme souligné précédemment.

2.2.1. Diffusion dans la phase liquide

Le processus de diffusion tend à homogénéiser la concentration d'un élément dans un solvant, qui peut être hétérogène au départ. Ce phénomène crée un flux diffusif, régi par la première loi de Fick, formulée comme suit :

$$\vec{N}_i^D = -D_i \cdot \overrightarrow{\text{grad}C_i} \quad (2.16)$$

Dans cette équation, C_i représente la concentration de l'élément i (mol/m^3), et D_i correspond au coefficient de diffusion de cet élément dans l'eau. Cette formulation s'applique localement, c'est-à-dire dans l'eau des pores. La description macroscopique de ce phénomène dépend de l'ampleur des modes de transport dans le milieu poreux. Ainsi, pour décrire le transport diffusif, on utilise un coefficient de diffusion effectif D_i^e , qui est généralement bien inférieur au coefficient de diffusion moléculaire D_i , en raison de l'opposition du solide à la diffusion du fluide. La loi de Fick peut alors être exprimée comme suit :

$$\vec{N}_i^D = -w \cdot \tau_l \cdot D_i \cdot \overrightarrow{\text{grad}C_i} \quad (2.17)$$

Cette équation introduit le coefficient de diffusivité effectif D_i^e , défini par:

$$D_i^e = w \cdot \tau_l \cdot D_i \quad (2.18)$$

Le paramètre w , qui représente la teneur en eau, indique que le flux diffusif concerne l'ensemble de la surface de la section et non un pore spécifique, tandis que τ_l désigne la tortuosité apparente de l'eau. La tortuosité apparente traduit le fait que les trajets empruntés par le fluide ne sont pas rectilignes, entraînant ainsi une diffusion le long d'un chemin plus long, comme illustré dans la Figure 2-1. La tortuosité est définie comme le rapport entre la longueur à parcourir et la distance réellement parcourue par l'élément diffusif. Ce paramètre est inhérent au milieu poreux. Cependant, la tortuosité définie de cette manière n'est pas nécessairement celle utilisée dans les équations (2.17) et (2.18). C'est pourquoi on parle de tortuosité apparente. Certains auteurs établissent un lien entre la tortuosité apparente et la tortuosité réelle, en l'élevant au carré ou en utilisant un facteur de constriction des pores (Wesselingh et Krishna, 2000).

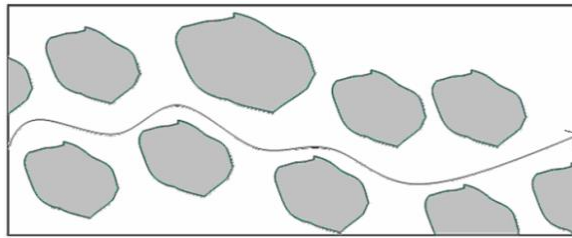


Figure 2-1 : Illustration de l'effet de la tortuosité (Didier, 2012).

Il existe un grand nombre de méthodes pour mesurer le coefficient de diffusion d'une espèce dans une phase liquide (Shackelford, 1991). Parmi elles, on retrouve des méthodes en régime permanent ou transitoire, basées sur la mesure du flux aux bornes de l'échantillon ou du profil de concentration à l'intérieur de celui-ci. Néanmoins, le cas d'un gaz dissous présente des défis particuliers, en particulier en ce qui concerne la dissolution du gaz du côté amont et la récupération et la mesure du gaz du côté aval de l'échantillon. Cela nécessite la mise en place de dispositifs expérimentaux plus ou moins complexes (Hildenbrand, 2003 ; Jacops *et al.*, 2012). Pour l'hydrogène, il est possible d'utiliser le gaz tritié comme traceur radioactif. Bien que la technique de détection soit relativement simple et sensible, elle soulève des problématiques liées à la manipulation de la radioactivité. Pierre Boulin a présenté une expérience dite "d'écho de diffusion", basée sur une mesure de pression, mais les résultats se sont avérés difficiles à exploiter (Boulin, 2008). À partir des données de diffusion dans l'eau établies par Wise et Houghton (Wise

et Houghton, 1966), Pierre Boulin a estimé un coefficient de diffusion de l'hydrogène dans l'eau à 20°C de l'ordre de $5 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$.

2.2.2. Diffusion dans la phase gazeuse

Au sein d'un fluide immobile ayant plusieurs composants, toute variation de concentration entre deux points du fluide tend à se réduire progressivement avec le temps en raison du mouvement aléatoire des molécules, également connu sous le nom de mouvement brownien. Ce phénomène est communément désigné sous le terme de diffusion moléculaire. Le principe est similaire à celui de la diffusion d'un élément dans la phase liquide. Toutefois, une distinction doit être faite entre un gaz et un liquide, car l'eau en tant que solvant, présente en quantité significative, ne prend pas en compte sa propre diffusion. En présence d'un mélange de gaz, chaque espèce se diffuse par rapport aux autres, et ce phénomène de diffusion ne se produit que lorsque la phase gazeuse est constituée de deux éléments ou plus. Cette section commence par une description générale de la diffusion de gaz, puis se focalise sur la diffusion au sein d'un milieu poreux.

Dans un mélange binaire comprenant deux espèces notées 1 et 2, la vitesse relative de 1 (u_1) et de 2 (u_2) est liée à la vitesse molaire moyenne. Cette vitesse relative correspond au flux diffusif défini par l'équation (2.16). Le mouvement relatif des espèces 1 et 2 est provoqué par l'application de forces sur chaque molécule. Ces interactions sont équilibrées par les frictions intermoléculaires, résultant des collisions entre les particules de chaque espèce. Ces forces peuvent être décrites par une variation du potentiel chimique g_1 du composant 1. La friction entre les molécules 1 et 2 est proportionnelle au coefficient de diffusion et à la vitesse $u_1 - u_2$, qui représente le mouvement relatif d'une espèce par rapport à l'autre.

Compte tenu du lien entre le phénomène de diffusion et les collisions moléculaires, une expression analytique du coefficient de diffusion peut être dérivée à partir des libres parcours moyens des molécules 1 et 2. Seuls les chocs avec les molécules de l'espèce différente induisent un mouvement diffusif, entraînant une augmentation de la vitesse relative comme décrit par les études de Present (1958) sur le principe de transfert des quantités de mouvement. Le coefficient de diffusion demeure indépendant des concentrations des constituants, même si, dans certaines situations où les masses molaires diffèrent considérablement, de légères variations peuvent être observées dans la réalité. Cependant, les valeurs numériques obtenues sont sensiblement différentes de celles généralement admises dans la littérature (Boulin, 2008).

Au sein d'un milieu poreux, en plus de l'interaction molécule/molécule, l'interaction molécules/pore introduit un second phénomène de diffusion : la diffusion de Knudsen, associée à un coefficient de diffusion. La diffusion de Knudsen s'apparente donc à l'effet Klinkenberg pour la diffusion. Désormais, cette diffusion ne dépend plus de la porosité ou de la tortuosité, mais de la taille des capillaires dans lesquels elle se produit.

Boulin et al. (2012) et Krishna & Wesselingh (1997), présentent un autre modèle pour étudier la diffusion en présence d'une matrice solide : le modèle "Dusty Gas Model" (DGM). Dans ce modèle, le milieu poreux est intégré de manière intrinsèque en tant que troisième constituant immobile dans les équations de Stefan-Maxwell.

Lorsque l'on prend en compte les deux processus de diffusion, tous deux dépendent de la température. L'expression du phénomène global de diffusion avec la température devient complexe lorsqu'on considère les deux processus conjointement. On peut toutefois simplifier en prenant en compte l'expression du coefficient de diffusion apparent déduite de la première loi de Fick, incluant une dépendance en température.

Pour déterminer expérimentalement le coefficient de diffusion d'une espèce présente dans une phase gazeuse, il est possible d'utiliser le même dispositif que pour la phase liquide. En ce qui concerne les cellules de diffusion, plusieurs types sont disponibles, se distinguant principalement par l'instrument de mesure situé en aval du système. Par exemple, Soukup et al. (2008) présentent les cellules de Wicke-Kallenbach et de Graham, les plus couramment utilisées pour les systèmes binaires. Ces cellules comportent deux compartiments entre lesquels est disposé l'échantillon poreux à analyser, et à l'intérieur desquels circulent des flux de gaz distincts. Pour la cellule de Wicke-Kallenbach (Figure 2-2(a)), le flux sortant est analysé au moyen d'un chromatographe en phase gazeuse (CPG), tandis que pour la cellule de Graham (Figure 2-2(b)), l'analyse s'effectue uniquement à l'aide d'un débitmètre une fois le régime permanent atteint. En général, ces deux cellules démontrent une faible incertitude de mesure et une bonne reproductibilité des résultats. Elles utilisent une série de disques poreux imperméables et d'échantillons pour limiter le gradient de pression entre l'amont et l'aval de la cellule.

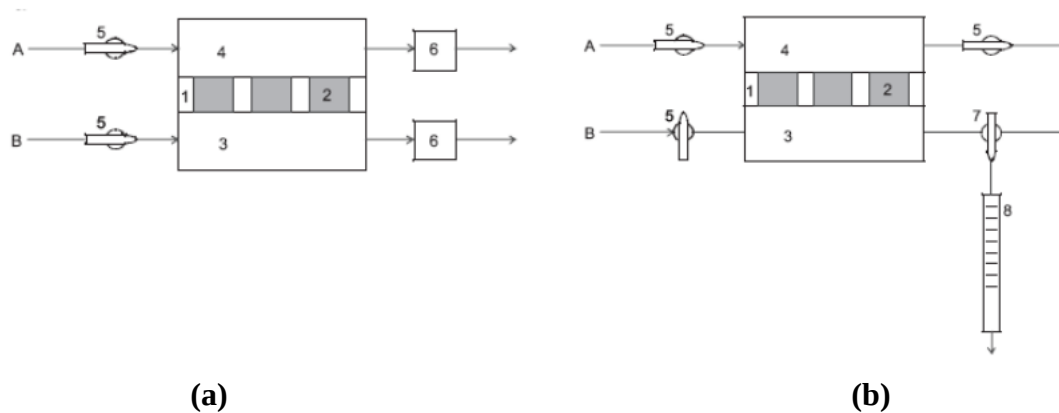


Figure 2-2 : Cellule de diffusion de Wicke-Kallenbach (a) et Graham (b). A et B : gaz, 1 : disque poreux, 2 : échantillon, 3 et 4 : compartiments aval et amont, 5 : vannes, 6 : chromatographe en phase gazeuse, 8 : débitmètre (Soukup *et al.*, 2008).

2.3. Pression d'entrée et pression capillaire

2.3.1. Notion

Lorsque les éléments métalliques présents dans le stockage se corrodent en conditions anaérobiques, de l'hydrogène gazeux est produit. À mesure que la pression s'accroît, une interface entre trois phases se forme à l'interface du conteneur et de l'argilite : hydrogène gazeux, eau porale et matrice solide de la couche géologique. Le mouvement du gaz à travers l'argilite est régi par deux grandeurs : l'angle de mouillage et la tension superficielle. L'angle de mouillage γ représente l'affinité du liquide avec le solide et influence l'infiltration du fluide non mouillant dans le milieu poreux lorsque sa pression dépasse la pression capillaire. Tandis que la tension superficielle σ , correspond à une force linéaire opérant à l'interface de deux milieux distincts, visant à réduire l'aire de cette interface.

La pression capillaire P_c , définie par la loi de Laplace (De Marsily, 1986) (2.19), correspond à la différence de pression entre les deux côtés de l'interface et est liée à la courbure de celle-ci ainsi qu'à la tension superficielle. En conséquence, le fluide non mouillant (par exemple le gaz dans le cas de l'argilite) ne s'infiltré dans le milieu poreux que lorsque sa pression dépasse la pression capillaire. La pression capillaire se traduit par la relation suivante :

$$P_c = P_g - P_l = \frac{\sigma}{R_c} \quad (2.19)$$

Où, P_c est la pression capillaire en Pa, P_g la pression du gaz (fluide non mouillant) (Pa), P_l la pression du liquide (fluide mouillant) (Pa) et R_c le rayon de courbure de l'interface (m). En prenant en considération les pores en tant que cylindres de rayon "r", il est possible d'exprimer la loi de Laplace de la manière suivante :

$$P_c = \frac{2 \cdot \sigma \cdot \cos \gamma}{r} \quad (2.20)$$

La pression capillaire joue un rôle clé dans la progression de l'interface gaz-liquide à l'intérieur d'un pore et évolue à différents niveaux de pression (Hildenbrand, 2003) : la pression d'entrée, la pression de percée et la pression résiduelle (Figure 2-3).

- La pression d'entrée correspond à la pression requise pour que le fluide non mouillant (le gaz) pénètre le milieu poreux saturé (Gallé, 2000). À ce niveau de pression critique, le gaz amorce l'invasion des pores de plus grande taille (Figure 2-3b).
- En augmentant la pression du gaz, on atteint la pression de percée. La pression continue à augmenter, conduisant ainsi à la création d'un cheminement continu pour les fluides non mouillants à travers le milieu poreux, en accord avec la loi de Laplace appliquée aux pores interconnectés de plus grande taille. L'élévation de la pression engendre également la formation de nouveaux chemins pour les fluides non mouillants. (Figure 2-3c).
- Après que la différence de pression ait diminué en dessous de la pression de percée, un phénomène de réimbibition se produit. Le liquide réenvahit progressivement les chemins récemment créés, commençant par ceux qui ont les plus petits diamètres, et finit par refermer les chemins de gaz. La différence de pression se stabilise alors à une certaine valeur, correspondant à la pression résiduelle (Figure 2-3d).

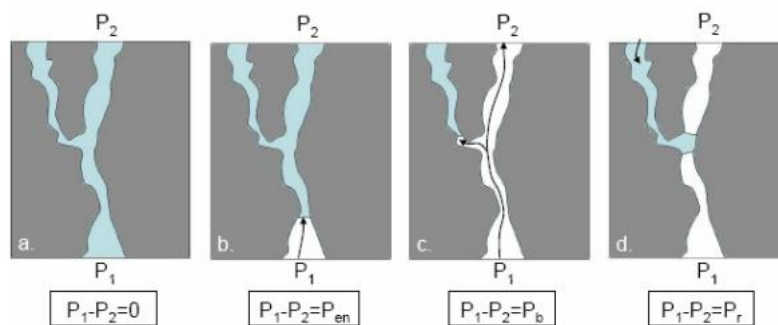


Figure 2-3 : illustration du phénomène de percée capillaire (Didier, 2012).

Dans cette figure, P_{en} représente la pression d'entrée, P_b correspond à la pression de percée, et P_r désigne la pression résiduelle. Les différentes phases, à savoir gazeuse, liquide et solide, sont symbolisées respectivement en blanc, bleu et gris.

2.3.2. Méthodes de caractérisation des pressions

Il existe diverses méthodes pour caractériser la pression d'entrée. Parmi elles, la porosimétrie au mercure est une approche simple permettant d'estimer la distribution des tailles de pores et d'en déduire une estimation de la pression d'entrée (Dana et Skoczylas, 2002 ; Egermann *et al.*, 2006 ; Li *et al.*, 2005). La méthode consiste à introduire de manière progressive du mercure, un liquide non mouillant, dans un matériau préalablement mis sous vide. Au cours de cette injection, le mercure envahit progressivement les pores de plus grande taille, et la courbe du volume de mercure en fonction de la pression appliquée permet d'obtenir le diamètre minimal des pores à partir duquel l'invasion du mercure dans le matériau débute. Toutefois, cette méthode présente une approche qualitative, car l'estimation de la pression d'entrée repose sur des facteurs subjectifs et des paramètres σ et γ qui peuvent ne pas être connus pour tous les systèmes binaires.

Une autre approche, la **méthode pas à pas** (Figure 2-4(a)), également connue sous le nom d'approche **standard**, repose sur une augmentation progressive de la pression du gaz en amont d'un échantillon saturé, tandis que le débit du liquide en aval est mesuré (Carles *et al.*, 2010 ; Egermann *et al.*, 2006 ; Gallé, 2000 ; Li *et al.*, 2005). Au départ, le débit en aval est inexistant, indiquant que le gaz n'a pas encore infiltré l'échantillon. Lorsque la pression en amont atteint la valeur de la pression d'entrée, le gaz commence à s'infiltrer dans l'échantillon, provoquant ainsi l'enregistrement d'un premier débit d'eau. Par la suite, une hausse significative du débit en sortie est observée, accompagnée de l'apparition de bulles de gaz dans le liquide, indiquant la percée du gaz. La pression d'entrée correspond à la différence de pression entre l'amont et l'aval au moment de la percée. Bien que cette méthode soit simple à interpréter, la détection du débit liquide en sortie peut être difficile, surtout pour les argiles présentant une faible macroporosité, en raison du débit peu élevé juste après avoir atteint la pression d'entrée, cette mesure se révèle délicate. De plus, la réalisation de cette expérience peut être chronophage, étant donné que la précision exige l'utilisation de paliers de pression graduellement élevés.

Il existe également la **méthode de la pression d'entrée dynamique** (Figure 2-4(c)) qui repose sur la mise en place d'un échantillon saturé en liquide au sein d'une cellule, suivi de l'application d'une pression de gaz (P_g) supérieure à la pression d'entrée (P_e). (Carles *et al.*, 2010 ; Egermann *et al.*, 2006). Au cours de l'essai, la pression en aval (P_w) est maintenue constante, tandis que l'interface gaz/liquide demeure en amont de l'échantillon, entraînant ainsi un débit de liquide en sortie déterminé par le gradient de pression ΔP_1 , correspondant à la différence entre la pression de gaz (P_g) et la pression en aval (P_w). Cependant, dès que le gaz pénètre dans l'échantillon, le débit en sortie diminue (Figure 2-4(c)) car une partie de la pression appliquée est utilisée pour contrer la pression capillaire. Un nouveau gradient de pression ΔP_2 (différence entre ΔP_1 et P_e) est alors établi. La variation totale de pression entre l'amont et l'aval de la cellule est soumise à la loi de Darcy, prenant en compte la nouvelle valeur du débit Q_2 et la perméabilité k , calculée à partir du débit avant que le gaz ne pénètre dans le matériau. Cette méthode offre la possibilité d'obtenir des valeurs précises de pression d'entrée rapidement. Cependant, elle n'est pas particulièrement adaptée aux milieux très peu perméables, où le changement de débit peut être difficile à détecter.

Une autre possibilité est la méthode développée par Meyn (1999). Il s'agit de la **méthode de soutirage dynamique** (Figure 2-4(b)), similaire à l'approche dynamique, mais se distinguant par la disposition de la pompe en aval de la cellule, permettant ainsi l'extraction continue de l'eau à un débit constant. Le déroulement de cette méthode se compose de trois étapes : initialement, l'eau se déplace de l'amont vers l'aval. De manière similaire à un essai en régime permanent classique, la pression en aval atteint un état d'équilibre. Par la suite, le gaz entre en contact avec la surface du matériau, mais la pression de pore

demeure trop élevée pour autoriser la pénétration du gaz dans l'échantillon, entraînant ainsi une diminution de la pression en aval due à l'extraction continue en aval de la cellule. Au fur et à mesure que la pression en aval diminue, la pression de pore suit la même tendance, facilitant ainsi l'infiltration du gaz dans l'échantillon. Le gaz déplace l'eau, et par conséquent, la pression en aval cesse de diminuer. La différence de pression en aval avant et après l'entrée du gaz correspond à la pression d'entrée P_e . Cette méthode peut se révéler rapide pour les échantillons perméables, mais elle s'avère peu adaptée aux matériaux peu perméables. Par ailleurs, lorsqu'il est nécessaire de mesurer une pression d'entrée élevée, la chute de pression significative à travers l'échantillon peut entraîner une évolution de la structure pendant l'essai.

Une approche plus rigoureuse est adoptée avec la **méthode de pression capillaire résiduelle** (Hildenbrand *et al.*, 2002). Le principe de cette méthode réside dans la mise en place d'un échantillon saturé en eau, positionné entre deux réservoirs de gaz, soumis à une différence de pression supérieure à la pression d'entrée. Le réservoir situé en aval de l'échantillon est fermé, tandis que celui en amont peut être fermé ou maintenu à une pression constante (Figure 2-4(d)). On observe alors une augmentation de la pression en aval, résultant du passage du gaz à travers l'échantillon. La variation de pression entre les deux réservoirs diminue progressivement, entraînant ainsi le processus de réimbibition. À la fin de l'essai, cette différence entre les pressions équivaut à la pression résiduelle, délimitant le point au-delà duquel la phase mouillante peut être déplacée. Cette méthode se distingue par sa rapidité comparée à d'autres techniques et par sa bonne reproductibilité. Cependant, elle a pour inconvénient de sous-estimer la valeur de la pression d'entrée (Zweigel *et al.*, 2005). La corrélation entre la pression résiduelle et la pression d'entrée demeure ambiguë et est influencée par de multiples facteurs, tels que la configuration du réseau de pores et les paramètres expérimentaux (pression de confinement, température, etc.). Certains chercheurs suggèrent que la pression résiduelle atteint au maximum la moitié de la pression d'entrée (Boulin *et al.*, 2011 ; Vassenden *et al.*, 2003).

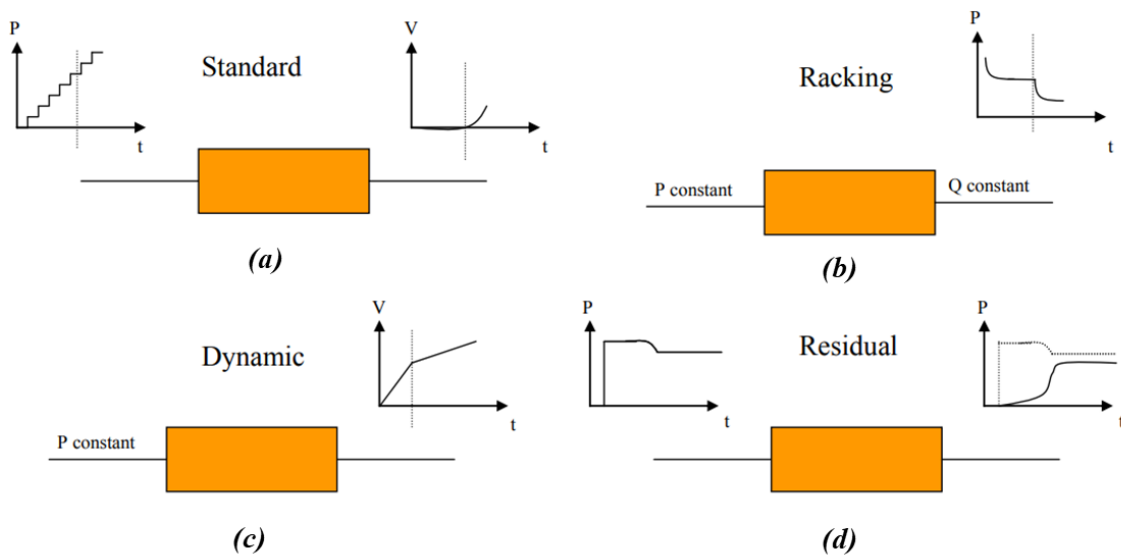


Figure 2-4 : Schéma descriptif de méthodes de mesure de pressions d'entrée (P : pression, V : accumulation d'eau, Q : débit) (Boulin *et al.*, 2011).

Enfin, la **méthode d'injection continue** qui offre une autre approche pour déterminer la pression d'entrée du gaz dans un matériau donné (Egermann *et al.*, 2006 ; Rudd et Pandey, 1973). Cette méthode consiste à injecter en continu le gaz en amont de l'échantillon à un débit très faible, tout en mesurant la pression en amont. On peut alors observer des sauts dans la pression, correspondant aux différentes pressions d'entrée, surtout lorsque le matériau est très hétérogène. Ces sauts se produisent au moment où le gaz traverse les

différentes hétérogénéités présentes dans le matériau (pores, inclusions minérales, etc.). Toutefois, il est important de noter que cette technique a tendance à surestimer la pression d'entrée, car elle néglige le gradient visqueux dans la phase liquide.

Pour notre étude, nous avons choisi d'utiliser la méthode standard en appliquant quelques changements dans le protocole. Cette méthode de mesure est présentée dans le CHAPITRE 4.

Harrington *et al.* (2012) ont observé dans leurs travaux des variations des pressions d'entrée, de percée et résiduelle du gaz, révélant l'hétérogénéité microstructurale. Cette hétérogénéité joue un rôle crucial dans le contrôle du mouvement du gaz. La localisation du flux de gaz est particulièrement évidente lors des essais d'injection de gaz à grande échelle, où le flux de gaz se concentre initialement dans la zone endommagée par l'excavation, agissant ainsi comme une voie préférentielle pour le gaz. Les résultats sont corroborés par les travaux de Harrington *et al.* (2017), qui montrent que les propriétés hydrauliques et de transport du gaz dans les échantillons fracturés sont principalement déterminées par les caractéristiques de la fracture. L'entrée de gaz se produit à des pressions beaucoup plus basses que celles observées dans une roche intacte. De plus, la perméabilité de l'échantillon fracturé dépend de la contrainte, augmentant de manière significative sous des contraintes de confinement inférieures à 4,5 MPa.

Selon les travaux de l'Andra (2005), la pression d'entrée de l'hydrogène dans l'argilite saine de Bure est estimée proche de 50 bar et de 30 bar pour la zone endommagée. La mesure de la pression d'entrée dans un matériau peu perméable constitue un défi complexe.

2.4. Transfert de gaz dans l'argilite du Callovo-Oxfordien

Lors des phases initiales de stockage des déchets radioactifs, les gaz résultant de la corrosion des composants métalliques entrent en contact avec l'eau présente dans les argilites et se dissolvent. Leur migration à travers l'eau dissoute se déroule selon deux processus identifiés dans le paragraphe 2.2. : la convection et la diffusion.

La convection est liée au mouvement de l'eau au sein des argilites, entraînant avec elle les gaz dissous. Ce phénomène est contrôlé par la perméabilité des argilites ainsi que par les gradients hydrauliques. La perméabilité à l'eau peut être évaluée grâce à la formule (2.3), et dans le cas des argilites, elle est très faible. De plus, l'absence d'un mécanisme hydraulique efficace rend le mode de transport convectif négligeable (Andra, 2005).

Quant à la diffusion, comme précédemment évoqué, elle résulte du phénomène de diffusion moléculaire et de la dispersion cinématique. Cependant, compte tenu du faible flux de Darcy et de la taille nanométrique du réseau de pores, la dispersion cinématique est négligeable. Ainsi, la diffusion semble jouer un rôle primordial dans ce contexte. Le coefficient de diffusion effectif jouera un rôle déterminant dans la capacité des gaz de corrosion à migrer hors du stockage.

Lors de la production de gaz au niveau des conteneurs, la concentration de gaz dissous dans les argilites augmente localement. Si le débit de gaz dissous hors de l'installation est insuffisant pour évacuer la quantité produite près des conteneurs, alors la concentration augmentera, conduisant à la formation d'une bulle de gaz et à l'apparition de nouveaux modes de transport.

2.4.1. **Entrée du gaz dans l'argilite du Callovo-Oxfordien saturé**

Dans le contexte du stockage des déchets radioactifs, il est primordial d'appréhender les propriétés capillaires des argilites en drainage. L'étude de la saturation en eau des argilites en fonction de la pression capillaire permet de déterminer la fraction de porosité accessible au gaz lorsque celui-ci s'accumule en pression et progresse en profondeur dans les argilites. Une porosité accessible plus importante rendra la montée en pression du gaz plus problématique, car la bulle de gaz occupera un volume plus grand. Toutefois, en raison des diamètres de pore réduits des argilites, les pressions capillaires très élevées limitent considérablement le volume supplémentaire occupé par la bulle de gaz dans ces formations. La pression continuera à augmenter jusqu'à ce que de nouveaux processus de transfert de gaz entrent en jeu.

La formation de la bulle de gaz est décrite dans les précédents paragraphes. Sa pénétration réelle dans le milieu environnant dépend de sa capacité à s'introduire dans des pores interconnectés, c'est-à-dire pour des pressions supérieures à la pression d'entrée, qualifiée de pression de percée. La réalisation de cette percée exige la présence de réseaux connectés pour des pressions de gaz inférieures à 120 bar (12 MPa), étant donné que des pressions de gaz supérieures entraîneraient des fissurations dans les argilites. Cette pression de gaz correspond à une pression capillaire de 70 bar (7 MPa) pour une pression en eau de 50 bar (5 MPa) (Boulin, 2008). Même en présence de ces réseaux de pores interconnectés, le gaz ne pourra pénétrer dans les argilites que s'il chasse l'eau de ces pores, impliquant un transfert biphasique (sans endommagement de la roche) pour de faibles pressions et un transfert par microfissuration ou un transfert par fracturation pour des pressions élevées. Le mouvement de l'eau des pores est induit par une augmentation locale de la pression d'eau. Un gradient de pression conduit ainsi au déplacement de l'eau selon la loi de Darcy. Par la suite, le gaz pénètre dans ces nouveaux réseaux qui deviennent accessibles par perméation. Les paramètres de perméabilité à l'eau et au gaz, en fonction de la saturation des argilites, jouent un rôle crucial dans le processus de percée du gaz à travers les argilites proches de la saturation.

Lorsque la différence de pression entre le gaz et le fluide interstitiel atteint la pression capillaire, le gaz déplace l'eau interstitielle dans une partie de la porosité. En raison de la pression capillaire plus élevée dans les petits pores, l'écoulement du gaz se fait préférentiellement à travers les pores plus grands. Ce phénomène correspond à des conditions d'écoulement biphasique.

Une autre voie possible pour la migration du gaz repose sur son intrusion dans la texture et la structure des phases minérales. Ce transfert est influencé par les forces de contact entre les phases minérales, notamment pour les minéraux argileux, via l'eau absorbée et l'eau interfoliaire. La pression du gaz continue d'augmenter jusqu'à ce qu'elle surmonte localement ces forces de contact, provoquant une dilatation de la porosité. Le gaz progresse alors dans une porosité nouvellement créée, caractérisée par des pores de taille plus importante, ce qui réduit la pression de déplacement requise. À l'échelle microscopique, cette dilatation de la porosité correspond à la formation de microfissures localisées. En raison de la faible viscosité des gaz et de la faible affinité des solides pour ces derniers, ce mécanisme de microfissuration permet le transfert de quantités significatives de gaz. Dans les argiles gonflantes, comme la smectite, ce phénomène peut se déclencher dès que la pression du gaz dépasse la pression de gonflement. Pour les argilites contenant des minéraux gonflants sous les contraintes mécaniques d'un stockage, la pression de gonflement est d'environ 7 MPa. Les études sur les argilites du COx montrent que la pression effective de gaz induisant une microfissuration se situe autour de 9 MPa (Andra, 2005).

Si la pression du gaz continue à croître, le seuil de rupture du matériau peut être atteint. En raison du champ de contraintes, une fracture se formera perpendiculairement à la direction de la contrainte mineure. Dans les argilites du COx, ce seuil de rupture s'élève à environ 12 MPa (Andra, 2005). Comme pour la

microfissuration, l'extension et l'ouverture de la fracture dépendent de la pression et du flux de gaz. Contrairement au transfert biphasique, ce mécanisme purement mécanique n'entraîne pas le déplacement de l'eau devant le front de pénétration du gaz.

Un modèle conceptuel de transfert du gaz, prenant en compte les différents mécanismes évoqués, a été développé pour l'ANDRA (Figure 2-5).

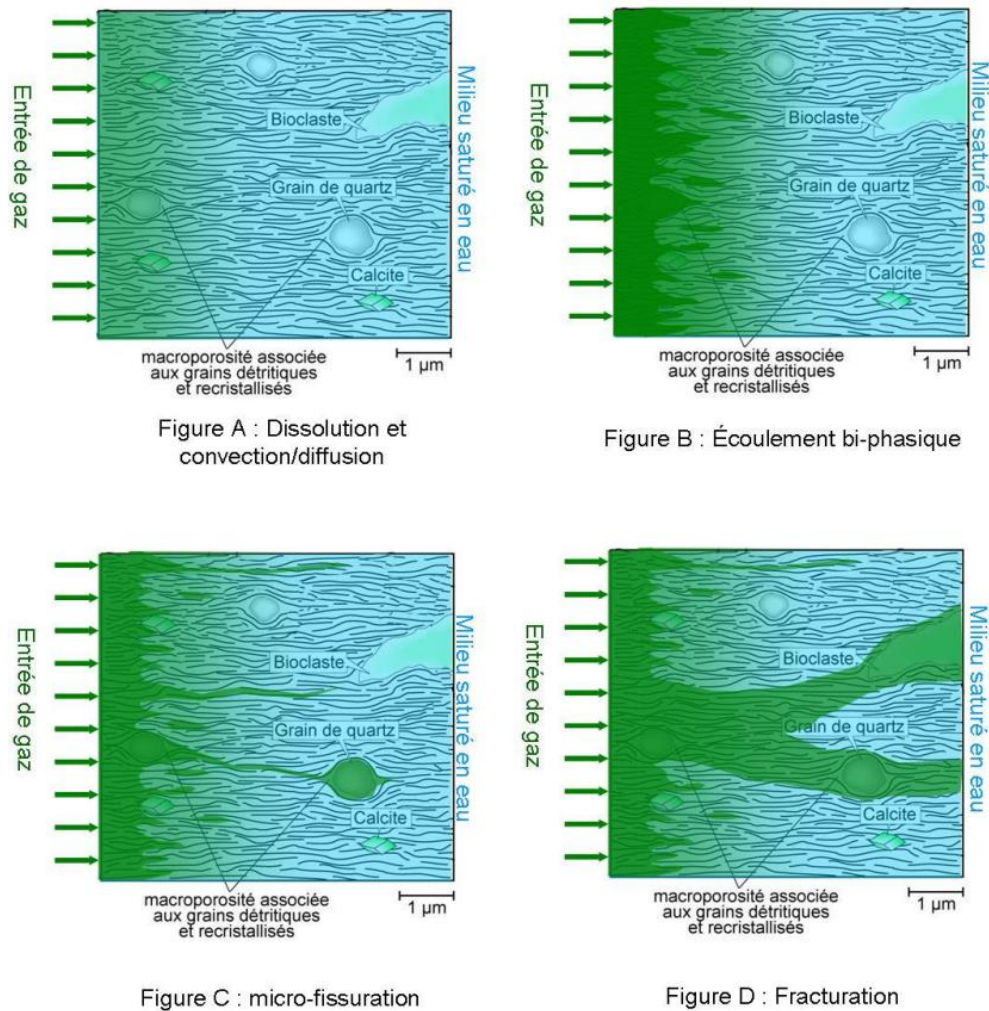


Figure 2-5 : Représentation schématique des différents mécanismes de migration des gaz dans les argilites du Callovo-Oxfordien (Andra, 2005).

La mobilité des fluides dans un milieu poreux dépend de la perméabilité intrinsèque du milieu, des perméabilités relatives fonction de la saturation, elle-même liée à la pression capillaire. Des modèles définissant ces relations sont présentés dans les travaux de Chen *et al.* (1999). Compte tenu des dimensions des pores des argilites, qui se situent à l'échelle du nanomètre, il devient impératif de considérer les interactions entre le gaz et les parois des pores, notamment l'effet Klinkenberg. Une caractérisation du paramètre de Klinkenberg serait pertinente pour quantifier cet effet lors de la perméation du gaz dans les réseaux accessibles à la percée du gaz. Pour les argiles, le gaz migre dans des pores de taille supérieure à 20 nm.

Le transfert de gaz est régi par deux processus majeurs : la perméation et la diffusion. La perméation gouverne le débit de gaz à travers une argile partiellement saturée en réponse à un gradient de pression. Elle joue un rôle primordial dans la migration du gaz sous forme gazeuse ainsi que dans l'établissement des gradients de pression de gaz au sein des chemins de migration. La diffusion joue également un rôle

crucial, car l'hydrogène n'est pas le seul gaz présent. En effet, le méthane et la vapeur d'eau peuvent également être présents. Dans le cas d'un gaz composé de plus de deux éléments, la loi de Fick n'est plus applicable, et les équations de Maxwell-Stefan doivent alors être utilisées. C'est en cela que réside l'importance du modèle Dusty Gas Model (DGM) (Boulin et al., 2012; Krishna & Wesselingh, 1997), qui intègre ces équations et offre ainsi la possibilité de modéliser le transport de mélanges de gaz multicomposants, qu'il s'agisse de perméation ou de diffusion. De plus, en prenant en considération l'effet Knudsen, le DGM permet d'évaluer l'influence des interactions entre les gaz de corrosion et les parois des pores des argilites.

Les pressions capillaires prévues au niveau de la bulle de gaz nécessitent des taux d'humidité relative compris entre 95 et 100 %. Ainsi, la migration de cette vapeur d'eau revêt une importance fondamentale, car elle peut influencer localement les équilibres thermodynamiques et, par conséquent, la saturation du milieu. Dans le contexte des gaz de corrosion dans un centre de stockage de déchets radioactifs, leur destin est conditionné par plusieurs facteurs : le coefficient de diffusion du gaz dissous dans l'eau, qui contrôle l'efficacité d'évacuation des gaz de corrosion des alvéoles en début de stockage ; la présence d'une porosité accessible au gaz pour des pressions capillaires suffisamment faibles afin d'éviter la fracturation des argilites ; les paramètres de transfert du gaz (DGM) et la perméabilité à l'eau, qui gouvernent la migration du gaz à travers la porosité accessible. Ainsi, l'obtention de toutes ces informations à partir d'essais sur des échantillons d'argilites du Callovo-Oxfordien est essentielle.

2.4.2. Effet de l'environnement propre au stockage profond

2.4.2.1 Effet mécanique

Dans le contexte in situ, les argilites sont soumises à des contraintes d'environ 12 MPa. Le couplage hydromécanique concerne la relation entre les contraintes mécaniques et les pressions de fluides. L'approche de Coussy (1991) a posé les fondations de cette connexion en utilisant les équations de poroélasticité (domaine réversible) et de poroplasticité. Ces équations permettent de décrire la relation entre la déformation et les pressions interstitielles dans un milieu poreux.

Les variations de pression hydraulique entraînent des changements dans les contraintes appliquées sur le matériau. Dans le cas de l'argile, les contraintes effectives peuvent être importantes, et si elles dépassent la résistance du matériau, des fissures se forment (Harrington et Horseman, 2003). À l'inverse, pour des contraintes effectives plus faibles, l'argile aura tendance à se détendre, entraînant un phénomène de gonflement. Ce problème peut être observé au niveau des tunnels, mais aussi sur les échantillons d'argilites prélevés in situ, et sera abordé dans la section suivante.

En se concentrant sur les champs lointains, on peut supposer que ces variations de contraintes mécaniques n'affecteront pas le transfert de gaz dans les argilites.

2.4.2.2 Effet thermique

Dans le contexte in situ, lors des premières années d'entreposage, les colis de déchets dégagent une quantité importante de chaleur, notamment les colis de déchets C. Cependant, l'argile présente une faible conductivité thermique, ce qui entraîne une dissipation lente de l'énergie thermique. Ainsi, la température tend à augmenter significativement au niveau des colis. On prévoit que les températures maximales aux abords des colis seront d'environ 70 à 90°C après 10 à 20 ans, puis elles diminueront progressivement vers des valeurs plus basses (20-30°C) après une durée de stockage estimée entre 500 et 1000 ans.

Toutefois, à proximité des alvéoles, au niveau des argilites du Callovo-Oxfordien, l'effet thermique est limité sur une période d'environ 100 ans (Andra, 2005). Bien que ce laps de temps soit relativement court par rapport à la durée totale du stockage des déchets radioactifs, il reste également limité par rapport à la problématique des gaz de corrosion. Par conséquent, la température ne devrait pas influencer de manière significative le transfert biphasique à travers les argilites.

2.4.2.3 Effet physico-chimique

Nous avons indiqué dans le chapitre 1 que les argilites présentent une structure en feuillets, avec une charge négative compensée par des cations interfoliaires échangeables avec ceux présents dans l'eau. Ces changements au niveau des cations ont des implications sur le comportement hydromécanique de l'argile. Par exemple, le passage d'une formation de Na-X à Ca-X réduit sa capacité d'absorption et de gonflement tout en augmentant sa perméabilité relative (Egloffstein, 2001).

Les ions issus de la corrosion se diffusent dans l'environnement proche, entraînant des transformations au sein de la bentonite. Des recherches menées par (Montes-Hernandez *et al.*, 2005) ont montré que la bentonite subit des changements significatifs sur une épaisseur d'un mètre après 10 000 ans d'exposition, principalement liés à la formation d'illite et à l'échange cationique. Ainsi, les produits de corrosion peuvent avoir un impact sur le champ proche des alvéoles, en particulier pendant toute la phase de corrosion des conteneurs.

Cependant, l'environnement physico-chimique peut être considéré comme stable, sans influencer les paramètres hydrauliques de la formation argileuse. Le couplage physicochimique devient particulièrement pertinent dans le cas de formations salines, par exemple en Suède ou en Allemagne, où des eaux à forte teneur en sodium posent des problèmes de dissolution de la matrice poreuse de la bentonite (Cuevas *et al.*, 2002 ; Mata Mena *et al.*, 2005).

Conclusion

Ce chapitre a exposé un aperçu des différentes lois d'écoulement, mettant en lumière l'effet Klinkenberg, l'impact de la saturation, ainsi que les méthodes de détermination expérimentale qui fournissent les outils nécessaires à l'établissement des protocoles expérimentaux dans les chapitres ultérieurs. De plus, les lois d'écoulement, notamment la loi de Darcy, offrent des méthodes de calcul de perméabilité qui seront également exploitées dans ces chapitres.

Le transfert au sein d'une phase a également été étudié, en portant une attention particulière à la diffusion dans la phase liquide et gazeuse, ainsi qu'à la pression d'entrée et la pression de percée capillaire, avec un accent particulier sur l'argilite du Callovo-Oxfordien. De ces analyses émergent des méthodes de détermination de ces différentes pressions. Ces méthodes seront utilisées pour calibrer le protocole d'essai qui sera mis en œuvre dans le chapitre 4. L'étude approfondie du transfert de gaz dans cette roche a permis d'analyser l'entrée du gaz dans l'argilite du Callovo-Oxfordien saturé, tout en prenant en considération les effets de l'environnement propre au stockage profond, tels que les effets mécaniques, thermiques et physico-chimiques.

Le prochain chapitre se concentrera sur l'auto-colmatage, un phénomène important dans le contexte des stockages profonds. Les impacts de divers facteurs sur ce processus seront examinés, et grâce à une variété d'outils, ce processus sera caractérisé.

CHAPITRE 3. : AUTO-COLMATAGE

Introduction

Comme présenté dans la section 1.2.3. , l'auto-colmatage de l'argilite du COx revêt une importance cruciale dans le contexte des stockages profonds. Il confère à la roche la capacité de retrouver partiellement son état initial en réduisant l'impact négatif des fissures lorsque celle-ci est resaturée. Plusieurs recherches se sont penchées sur ce phénomène, confirmant son existence. Néanmoins, peu d'informations sont disponibles concernant le processus d'auto-colmatage en fonction de différentes températures et différents fluides.

Dans ce chapitre, nous aborderons l'impact de la température, de la teneur en calcite, de l'orientation des échantillons, de la largeur initiale des fissures et de l'injection de gaz sur le phénomène d'auto-colmatage de fissures artificielles dans des éprouvettes cylindriques d'argilite du COx. Ce chapitre sera divisé en deux parties. La première partie sera consacrée à la présentation des échantillons utilisés et leur préparation, suivie de la description du dispositif expérimental, du protocole mis en place, et de la méthode de traitement des données. La seconde partie portera sur l'analyse et la discussion des résultats obtenus.

Pour étudier le phénomène d'auto-colmatage, deux types d'essais d'auto-colmatage sont réalisés sur l'argilite du COx. Le premier consiste en un test d'auto-colmatage avec une injection de l'eau à différentes températures, avec des teneurs en calcite variées, en changeant l'orientation des échantillons (parallèles et perpendiculaires au plan de litage) et l'ouverture initiale des fissures. Le second est un test d'auto-colmatage mixte avec une injection combinée d'eau et de gaz. Un scan 3D aux rayons X sera effectué sur tous les échantillons testés avant, pendant et après les essais, dont les données seront analysées à l'aide d'un logiciel de pointe pour la visualisation et l'analyse des données de tomographie assistée par ordinateur (CT), permettant ainsi d'estimer l'évolution du volume des fissures. La perméabilité à l'eau et au gaz sera également mesurée en continu tout au long des essais. À notre connaissance, il n'existe aucune étude similaire dans la littérature caractérisant le processus d'auto-colmatage dans des roches argileuses soumises à des conditions aussi variées et complexes.

3.1. Préparation des échantillons

Les essais d'auto-colmatage ont été réalisés sur des échantillons de forme cylindrique (Figure 3-1) d'un diamètre de 20 mm et d'une hauteur de 40 mm. Ces échantillons ont été prélevés dans les forages effectués par l'Andra au sein de son laboratoire souterrain à bure. Étant donné la grande sensibilité des propriétés mécaniques de l'argilite COx à la saturation en eau, ainsi que les possibles modifications de la microstructure dues aux processus de désaturation ou de resaturation de l'eau (Auvray et al., 2015; Bemmer et al., 2004; Conil et al., 2018; Grgic et al., 2023; Liu et al., 2018; Montes et al., 2004), une attention particulière a été accordée dans cette étude pour minimiser tout dommage éventuel sur les échantillons induit par des fluctuations dans leur saturation en eau. Ainsi, les échantillons ont été soigneusement entreposés après le prélèvement et la préparation, dans le but d'éviter une dégradation significative de leur teneur en eau pendant la période d'attente précédant les essais, tout en maintenant leur taux de saturation en eau le plus proche possible de la valeur initiale, c'est-à-dire près de 100 %. Pour garantir que le niveau de saturation en eau de chaque échantillon initial reste au-dessus de la limite autorisée par l'Andra (c'est-à-dire un minimum de 90 %) en vue des tests mécaniques (Conil et al., 2018), chaque échantillon de base a été minutieusement enveloppé d'une couche de Parafilm, puis placé sous vide. Les échantillons placés sous vide ont ensuite été conservés dans une cloche avec une hygrométrie de 100%.

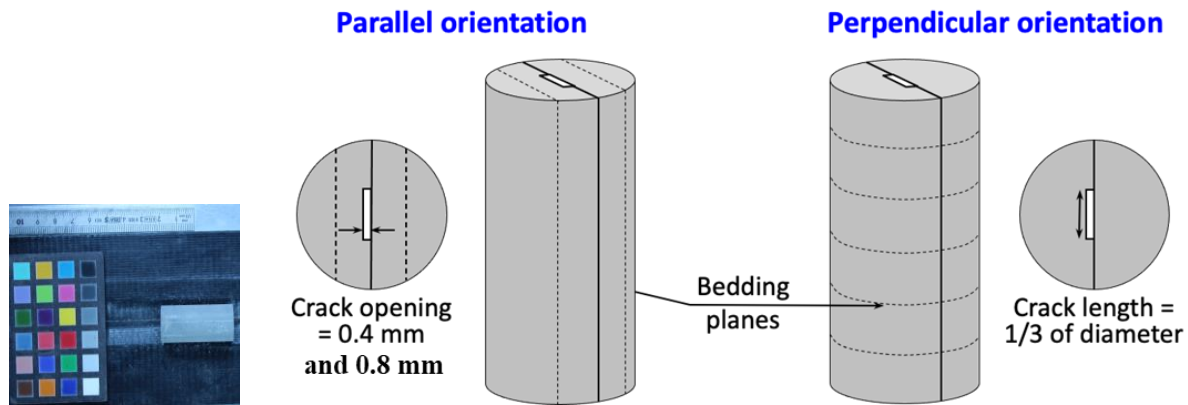


Figure 3-1 : Géométrie des fissures artificielles des échantillons cylindrique ($\varnothing = 20$ mm ; $h = 40$ mm) pour les essais d'auto-colmatage (Agboli *et al.*, 2023).

Avant chaque test, les échantillons ont été artificiellement fracturés. Pour cela, ils ont été d'abord coupés en deux le long d'un plan contenant l'axe du cylindre, puis l'une des faces a été usinée pour obtenir une fissure sur un tiers du diamètre (Figure 3-2), dont l'ouverture a été contrôlée avec une grande précision grâce à un fraisage réalisé à l'aide d'un outil de haute précision. Cette méthode de fraisage régulière permet de créer un espace artificiel sans causer de dommages significatifs à la matrice. En effet, seulement un petit nombre de particules sont extraites jusqu'à atteindre la profondeur souhaitée. Il est important de noter que la réalisation de cette fissure artificielle provoque un assèchement des extrémités de la fissure, mais cela reste probablement modéré étant donné que ce processus est relativement rapide (environ une demi-heure). De plus, la fissure est rapidement réhumidifiée lors de la première étape du test d'auto-colmatage.



Figure 3-2 : Echantillon d'argilite du COx coupé en deux avec une face usinée pour l'essai d'auto-colmatage.

Pour ces essais, deux orientations de l'axe de l'échantillon ont été considérées : parallèle et perpendiculaire au plan de litage, afin de prendre en compte l'effet de l'anisotropie de l'argilite. Conformément aux travaux antérieurs (Auvray *et al.*, 2015 ; Giot *et al.*, 2019) et aux recommandations de l'Andra, une ouverture de 400 μm a été choisie pour la fissure initiale. Une ouverture plus large de 800 μm sera également testée pour vérifier si l'auto-colmatage reste efficace pour les fissures larges. La Figure 3-1 présente la géométrie des échantillons fissurés artificiellement pour les orientations parallèle et perpendiculaire. Ainsi, la fissure initiale a un volume théorique initial équivalent à 106,5 mm^3 et 213 mm^3 pour des ouvertures de 0,4 mm et 0,8 mm, respectivement. Ces échantillons artificiellement fracturés sont ensuite placés dans une membrane étanche en Viton© avant d'être installés dans la cellule triaxiale. Cette membrane permet d'isoler l'échantillon de l'huile de confinement.

3.2. Dispositif expérimental

Une mini cellule triaxiale (Figure 3-3) a été spécialement conçue pour réaliser les essais d'auto-colmatage sur les échantillons préparés (Figure 3-1). Elle mesure 250 mm de hauteur et 100 mm de diamètre.

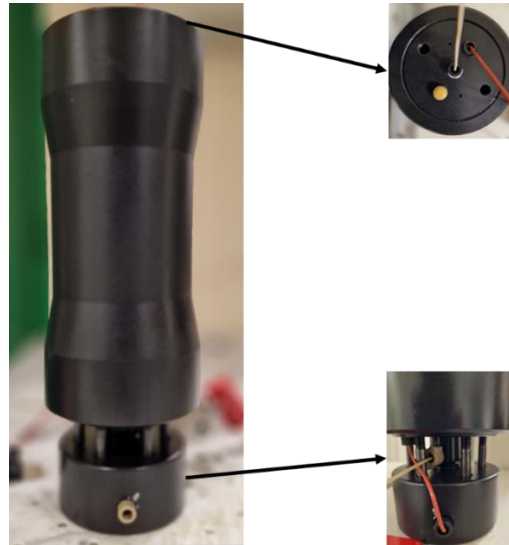


Figure 3-3 : cellule de compression triaxiale en PEEK CF30.

La particularité de cette cellule réside dans son corps en PEEK CF30 (PolyEtherEtherKetone, contenant 30 % de fibres de carbone), le rendant transparent aux rayons X. Ainsi, il est possible de suivre l'évolution du volume de la fissure dans l'échantillon à différents moments sous un CT-scan (CT : computed tomography) à haute résolution (Figure 3-4). De plus, cette cellule est capable d'appliquer une pression de confinement allant jusqu'à 12 MPa sur les échantillons.

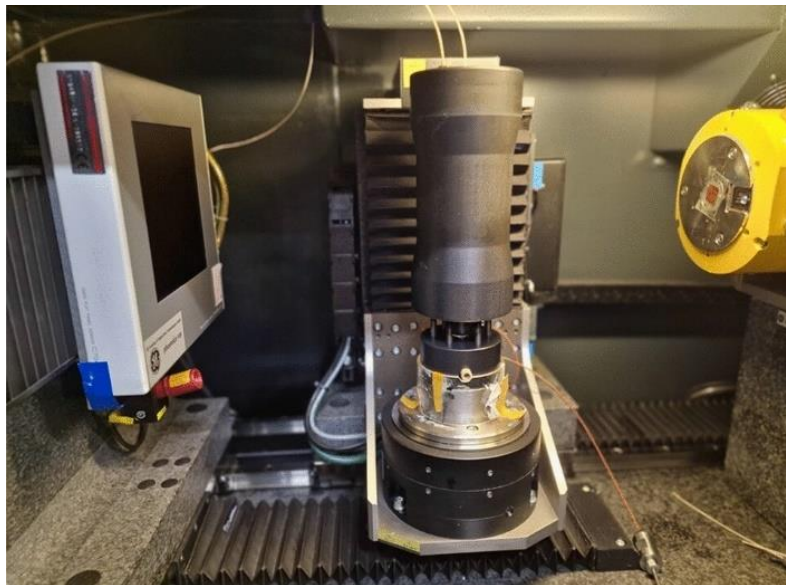
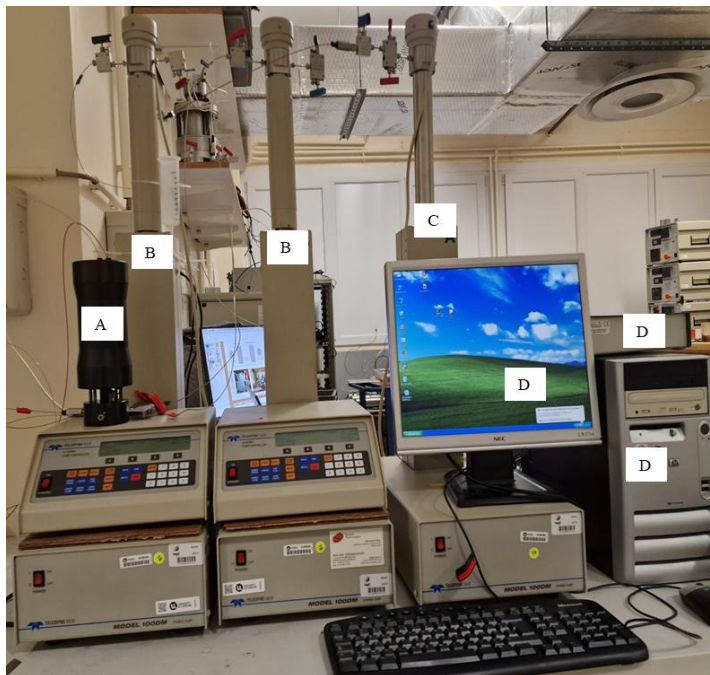


Figure 3-4 : Cellule de compression triaxiale en PEEK dans un nanotomographe à rayon X (Agboli *et al.*, 2023).

Pour l'injection des fluides (eau ou gaz) à différentes pressions dans l'échantillon, des trous de drainage ont été intégrés aux deux extrémités de la cellule. Les fluides sont injectés en utilisant des générateurs de pression (pompes seringues de haute précision) reliés à des raccords flexibles et des connecteurs de circuit d'injection en matériau PEEK (Figure 3-5). Ce système permet une rotation à 360° de l'échantillon lors de la tomographie à rayons X, facilitant ainsi les scans en 3D de l'échantillon avant, pendant et après l'essai

d'auto-colmatage. Pendant les tests d'auto-colmatage, les pressions des fluides en amont et en aval, ainsi que les volumes de fluides échangés, sont enregistrées en continu grâce aux générateurs de pression, ce qui permet de mesurer en continu le débit du fluide et, par conséquent, la perméabilité de la fissure.



A : Cellule triaxiale en PEEK CF30
B : Pompe à injection de fluide
C : Pompe à injection d'huile
D : Dispositif d'acquisition

Figure 3-5 : Pompes d'injection de fluides et dispositif d'acquisition.

3.3. Protocole expérimental

Les essais d'auto-colmatage seront réalisées avec de l'eau synthétique fournie par l'Andra, dont la composition chimique se rapproche de celle de l'eau interstitielle in situ à l'URL de l'Andra. La composition minéralogique de cette eau est présentée dans le Tableau 3-1. Le gaz choisi pour l'étude est l'azote à cause de ces propriétés gaz inerte, ce qui limite de façon significative les interactions chimiques avec les éléments chimiques présents dans la roche.

Tableau 3-1 : Composition minéralogique de l'eau synthétique de l'Andra (Andra, 2015).

Chemical element	Content (g/l)
NaCl	1.950
NaHCO ₃	0.130
KCl	0.035
CaSO ₄ .2H ₂ O	0.630
MgSO ₄ .7H ₂ O	1.020
CaCl ₂ .2H ₂ O	0.080
Na ₂ SO ₄	0.700

Les essais d'auto-colmatage se déroulent suivant les étapes suivantes définies en accord avec l'Andra :

1. Les éprouvettes cylindriques initialement fracturées artificiellement sont équipées d'une membrane étanche en Viton© puis placées dans la cellule triaxiale en PEEK.

2. La contrainte hydrostatique (pression de confinement) est ensuite augmentée à 4 MPa, correspondant à la pression appliquée sur les parois des galeries par le gonflement des argiles (bentonite) du bouchon. Cette pression de confinement est maintenue constante tout au long de l'essai.
3. Après stabilisation de la pression de confinement, un premier scan 3D aux rayons X est réalisé pour enregistrer la forme initiale de la fissure.
4. L'eau synthétique est ensuite injectée depuis l'embase (en amont) de l'échantillon à un débit constant de 0,05 ml/min afin de saturer la fissure.
5. Lorsque la sortie de l'eau s'amorce depuis la partie supérieure de la cellule (en aval), l'injection est interrompue. Par la suite, une nouvelle acquisition tridimensionnelle par rayons X est entreprise afin d'analyser la fissure après sa saturation en eau.
6. Ensuite, une circulation d'eau est imposée dans l'échantillon fracturé avec un gradient de pression d'eau de 0,2 MPa (pression en amont = 1 MPa ; pression en aval = 0,8 MPa), en maintenant un débit limite de 0,02 ml/min pour éviter tout endommagement de la fissure dû à une circulation trop rapide de l'eau. La cellule triaxiale et les conditions expérimentales sont représentées sur la Figure 3-6.
7. Une fois l'écoulement stabilisé avec un gradient de pression constant de 0,2 MPa, la perméabilité à l'eau est mesurée. Cette mesure n'était généralement pas réalisable au début de l'essai d'auto-colmatage car la fissure est totalement ouverte et sa perméabilité quasi infinie.

Toutes les étapes décrites jusqu'ici sont réalisées à température ambiante (20°C).

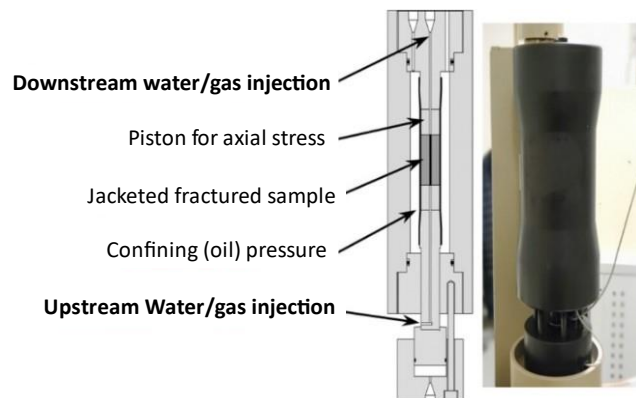


Figure 3-6 : Schéma de la cellule triaxiale en PEEK avec l'échantillon de l'argilite du Cox à l'intérieur (Agboli *et al.*, 2023).

Pour les essais d'auto-colmatage réalisés sous température (20°C, 40°C et 80°C), on augmente la température juste après l'étape 7, lorsque le gradient est constant. Celle-ci se fait via un système de chauffage contrôlé (Figure 3-7) autour de la cellule triaxiale (bain marie). Le bain marie est constitué d'un bac en acier contenant de l'huile dont la température est contrôlée par un thermoplongeur qui permet de fixer la température et de brasser l'huile pour avoir une température homogène dans tout le bac.

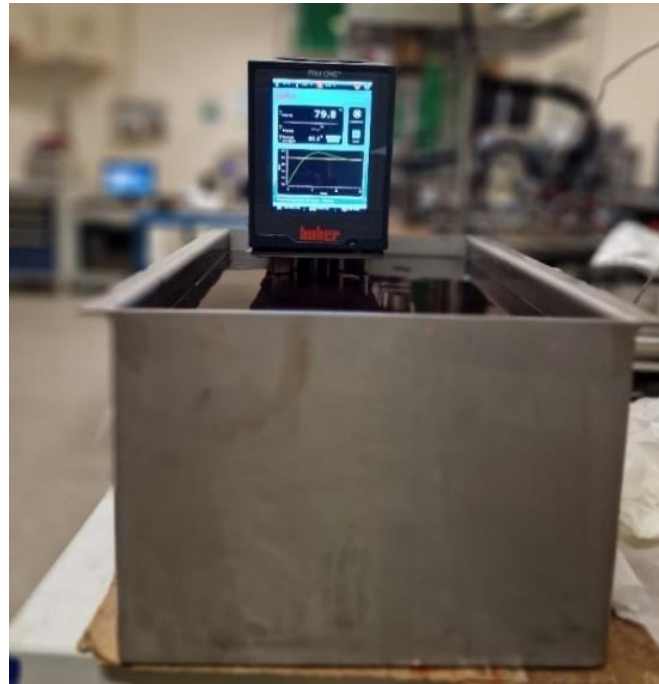


Figure 3-7 : Dispositif de chauffage.

Les paramètres utilisés pour les essais d'auto-colmatage avec injection d'eau sont répertoriés dans le Tableau 3-2 ci-dessous.

Tableau 3-2 : Paramètres utilisés au cours des essais d'auto-colmatage avec injection d'eau.

Paramètres	Essais avec injection d'eau
Dimensions	$\varnothing = 20 \text{ mm}$; $h = 40 \text{ mm}$
Ouverture de la fracture	0,4 et 0,8 mm
Température	20 °C, 40 °C, 80 °C
Pression de confinement	4 MPa
Fluide injecté	Eau
Pression d'injection du fluide	Amont = 1 MPa ; Aval = 0,8 MPa

Les essais d'auto-colmatage mixte avec injection d'eau et de gaz, réalisés à température ambiante, ont été réalisées avec une procédure similaire à la précédente. Ici, l'injection du gaz dans l'échantillon (par l'embase) a lieu à différents moments après l'étape 7, avec une pression en amont variable selon le niveau de l'auto-colmatage de la fissure, tandis que la partie aval était maintenue à pression atmosphérique. . Pendant les phases d'injection de gaz, la circulation du gaz a d'abord évacué l'eau remplissant la fissure et les capillaires. Une fois la fissure et les capillaires vidés, le gaz peut circuler en continu dans l'échantillon. Après stabilisation du flux de gaz, nous avons mesuré la perméabilité au gaz. Suite à la phase d'injection de gaz qui dure en moyenne 24h, on recommence la procédure à partir de l'étape 4 sans forcément effectuer les scans 3D aux rayons X. Les paramètres utilisés pour les essais d'auto-colmatage avec injection d'eau sont répertoriés dans le Tableau 3-3 ci-dessous.

Tableau 3-3 : Paramètres utilisés au cours des essais d'auto-colmatage avec injection d'eau et de gaz.

Paramètres	Essais avec injection d'eau
Dimensions	Ø = 20 mm ; h = 40 mm
Ouverture de la fracture	0,4 mm
Température	20 °C
Pression de confinement	4 MPa
Fluide injecté	Eau et gaz
Pression d'injection du fluide	Eau : Amont = 1 MPa ; Aval = 0,8 MPa Gaz : Amont > pression de percée ; Aval = pression atmosphérique

Les références des différents échantillons, ainsi que leurs caractéristiques et les conditions expérimentales, sont présentées dans le Tableau 3-4. Chaque test d'auto-colmatage dure au moins un mois.

Tableau 3-4 : Références des différents échantillons avec les caractéristiques et les conditions expérimentales correspondantes.

Echantillon	%CaCO ₃	Densité des grains (g/cm ³)	Ouverture de la fracture (µm)	Orientation	Fluide injecté	Température (°C)
Auto-colmatage avec injection d'eau						
EST60018-71	5,3	2,61	400	⊥	Eau	20
EST62690-2	20,6	2,67	800	//	Eau	20
EST60766-3	21	2,67	400	//	Eau	20
EST66697-18	26,8	2,68	400	⊥	Eau	20
EST63744-7	32	2,69	400	//	Eau	20
EST63744-11	32	2,69	400	⊥	Eau	20
EST60007-71	52,8	2,71	400	⊥	Eau	20
EST59996-71	68,1	2,71	400	⊥	Eau	20
EST66727-05	21,2	2,68	400	//	Eau	40
EST66703-12	26,5	2,6	400	⊥	Eau	40
EST66418-10	25,4	2,69	400	//	Eau	80
EST66703-13	26,5	2,6	400	⊥	Eau	80
Auto-colmatage avec injection de gaz						
EST66723-11	20,8	2,66	400	⊥	Eau/gaz	20
EST66418-05	25,4	2,69	400	//	Eau/gaz	20

3.4. Mesure de perméabilité

La perméabilité à l'eau des échantillons fissurés a été évaluée à partir des données expérimentales. L'évaluation est basée sur une approche d'écoulement permanent utilisant la loi de Darcy, qui décrit le débit à travers un milieu poreux induit par un gradient de pression. La perméabilité intrinsèque à l'eau, notée k_{∞} , a été calculée en utilisant la formule (2.3) du paragraphe 2.1.3. la viscosité dynamique de l'eau

μ_l utilisée, varie en fonction de la température. Le Tableau 3-5 nous donne les valeurs de la viscosité dynamique de l'eau en fonction de la température.

Tableau 3-5 : Viscosité dynamique de l'eau en fonction de la température.

Température (°C)	Viscosité dynamique de l'eau μ (Pa.s)
20	0,001
40	0,000653
80	0,000355

Il est à noter que la perméabilité obtenue dans ce contexte est en réalité une "perméabilité apparente" dans le sens où le débit mesuré est celui d'un milieu poreux fracturé. Cependant, étant donné que la perméabilité de la matrice de l'argilite est extrêmement faible (inférieure à 10^{-20} m²), la perméabilité mesurée correspond probablement à la perméabilité intrinsèque de la fissure.

La perméabilité au gaz, a été mesurée en laboratoire à l'équilibre en utilisant l'équation de Darcy pour l'écoulement des gaz compressibles (2.7) présentée dans le paragraphe 2.1. la viscosité dynamique utilisé pour le calcul est celle de l'azote à 20°C ($\mu = 0,000017572$ Pa.s). Cette perméabilité mesurée au gaz est une "perméabilité apparente", mais étant donné que le flux de gaz se produit principalement dans la grande fracture, les effets de Klinkenberg ou de glissement sont probablement négligeables dans ce cas. Par conséquent, la perméabilité mesurée peut être considérée comme étant la perméabilité intrinsèque et cette perméabilité est celle de la fracture car le flux de gaz se produit principalement à travers celle-ci.

3.5. Tomographie 3D au rayon X : acquisition et analyse des données voxels

La cellule triaxiale en PEEK est insérée dans un GE Phoenix Nanotom S CT (Figure 3-4) pour réaliser des scans 3D à différents moments au cours de chaque test d'auto-colmatage. La résolution des voxels est de « seulement » 24 μ m car elle est limitée par la taille de la cellule triaxiale PEEK, qui impose une distance relativement importante entre la source de rayons X et le détecteur. Le scanner est équipé d'un tube/générateur de rayons X microfoyer de 180 kV et d'un détecteur CMOS de 5 MPx, avec un scintillateur de type Hamamatsu 2300x2300 CsI (iodure de césium). Les systèmes micro-focus et Flat CMOS permettent d'obtenir des images radiologiques haute définition à des fréquences d'acquisition allant de 500 ms à plusieurs dizaines de minutes.

Le tomographe Phoenix possède une chambre auto-protégée qui permet un accès sécurisé aux circuits hydrauliques pour générer les pressions de confinement et d'injection d'eau/gaz dans la cellule triaxiale. Les paramètres d'acquisition sont les suivants : 1500 projections, 3 images par projection, une image toutes les 1000 ms, et un temps d'exposition de 1000 ms, ce qui fournit à la fin du scan 1500 projections, une tension de 120 kV et une intensité de 200 μ A des rayons.

Une fois le volume de l'échantillon reconstruit en 3D, les images ont été analysées à l'aide du logiciel VGStudio MAX (Volume Graphics GmbH). Ce logiciel permet d'isoler et de visualiser la fracture et de quantifier les variations de son volume au cours du test d'auto-colmatage. Le volume a été estimé en comptant le nombre de voxels attribués à la fissure dans l'échantillon reconstruit. Cependant, le principal défi était de distinguer le vide du reste de l'échantillon après la reconstruction, car le vide est rempli d'eau.

Pour surmonter ce défi, une méthode basée sur l'analyse de porosité/inclusion de VGSTUDIO MAX 3.5 a été employée. Ce module permet de quantifier les vides (porosités) ainsi que les inclusions présentes dans le matériau. Les vides apparaissent sous forme de zones plus sombres que le matériau, tandis que les inclusions se manifestent par des zones plus lumineuses, comme illustré dans l'exemple de la Figure 3-8.

Vide (porosité) : Plus sombre que le matériau environnant

Inclusion : Plus lumineux que les matériaux environnants

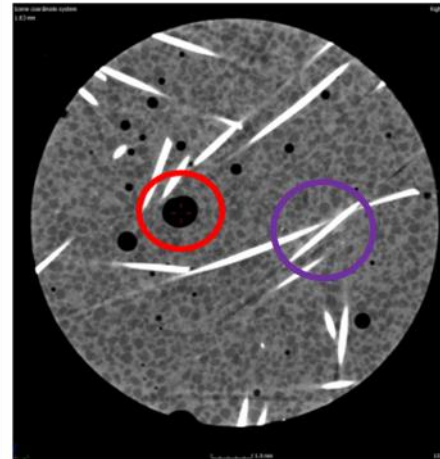


Figure 3-8 : Représentation des vides et inclusions dans un matériaux.

En utilisant l'option « only threshold » du module porosité/inclusion du logiciel VGSTUDIO MAX 3.5, les étapes suivantes ont été suivies pour estimer le volume des vides :

- Superposer parfaitement tous les scans 3D d'un échantillon en utilisant les outils de VGSTUDIO MAX 3.5, de manière à ce que tous les points soient fusionnés et mis à la même échelle, la seule différence étant la surface de la fissure.
- Déterminer la zone où se situe la fracture sur le premier scan 3D et extraire cette zone de tous les autres scans.
- Une fois toutes les zones d'intérêt extraites, déterminer les vides en utilisant la méthode basée sur l'analyse de la porosité/inclusion de VGSTUDIO MAX 3.5 avec l'option seuil seul sur le mode poreux.

Il est important de noter que le logiciel VG Studio Max assiste l'utilisateur dans la détermination de la valeur du seuil. L'utilisateur sélectionne d'abord les pixels correspondant au fond (vides ou fissures dans notre cas) et ceux correspondant au matériau (argile dans notre cas). Ensuite, le logiciel calcule approximativement la valeur du seuil qui peut varier d'un scan à l'autre. Une fois ces étapes réalisées, le logiciel fournit de nombreuses données exploitables telles que le volume total des pores, le volume des pores connectés, la surface des pores, le rayon moyen des pores, etc. Ces pores représentent le vide dans la fissure, rempli par l'eau, et permettent ainsi de déterminer le volume de la fissure au cours des tests d'auto-colmatage.

3.6. Résultats et analyse

3.6.1. Influence de l'orientation sur le processus d'auto-colmatage

Pour observer l'influence de l'orientation de l'échantillon sur le processus d'auto-colmatage, des essais d'auto-colmatage ont été réalisés (à température ambiante) sur des échantillons ayant des orientations différentes, c'est-à-dire parallèle (EST63744-7) et perpendiculaire (EST63744-11) au plan de litage, mais avec la même teneur en carbonate de calcium (calcite) (32%) et la même ouverture de fissure (400 μm). L'évolution de la perméabilité à l'eau des deux échantillons sont représenté sur la Figure 3-9. La perméabilité de l'échantillon parallèle EST63744-7 est passé de $3,42 \times 10^{-16}$ à $2,04 \times 10^{-17} \text{ m}^2$ en 35 jours.

Celle de l'échantillon perpendiculaire EST63744-11 est passé de $4,12 \times 10^{-17}$ à $1,07 \times 10^{-18} \text{ m}^2$ en 44 jours. On a observé une réduction de la perméabilité à l'eau pour les deux orientations.

La Figure 3-10 illustre l'évolution du volume de la fracture obtenue à partir de l'analyse des images de tomographie 3D aux rayons X réalisée sur l'échantillon perpendiculaire EST63744-11. Avant la saturation en eau (juste après la charge hydrostatique), le volume de la fracture était de $126,2 \text{ mm}^3$. Juste après la saturation de la fissure, il a chuté à 96 mm^3 . Après 44 jours, le volume s'est réduit à $60,8 \text{ mm}^3$. L'auto-colmatage a d'abord été rapide, puis modéré. La Figure 3-11 montre l'évolution d'une coupe transversale et longitudinale de la fissure au début et après 44 jours d'essai. On peut observer que l'auto-colmatage entraîne une réduction de la fissure sur l'échantillon orienté perpendiculairement au plan de stratification.

Les scans 3D de ces deux essais sont présentés dans les Figure 3-9 à Figure 3-12.

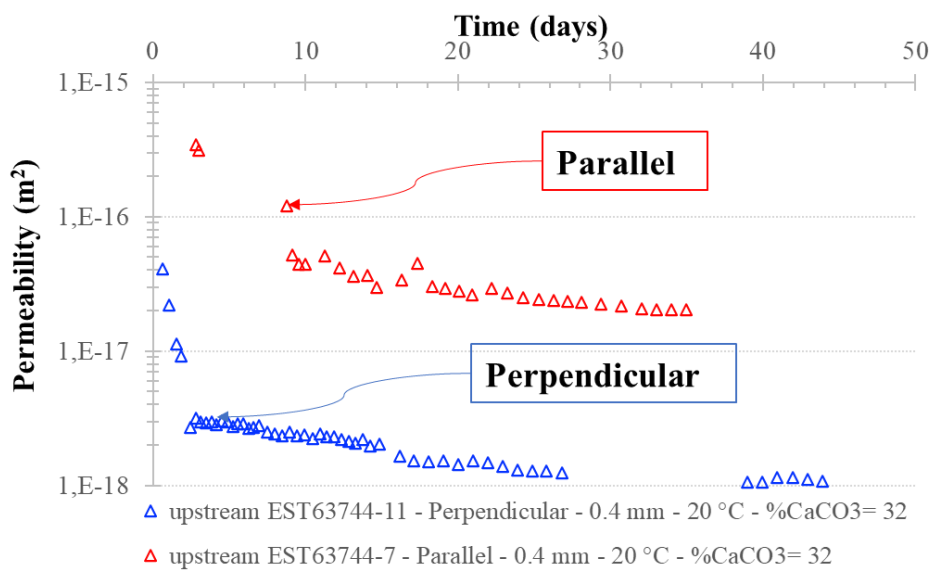


Figure 3-9 : Évolution de la perméabilité à l'eau en amont de l'échantillon parallèle EST63744-7 et de l'échantillon perpendiculaire EST63744-11 pendant l'essai d'auto-colmatage à 20°C.

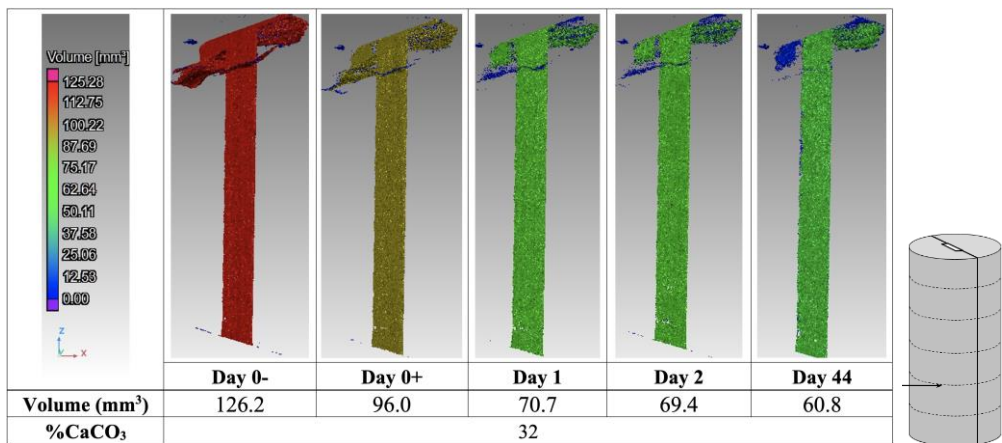


Figure 3-10 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST63744-11 montrant l'évolution du volume de la fissure avec le temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 20°C (Jour 0- : après la charge hydrostatique ; Jour 0+ : après la saturation de la fissure) (Agboli *et al.*, 2023).

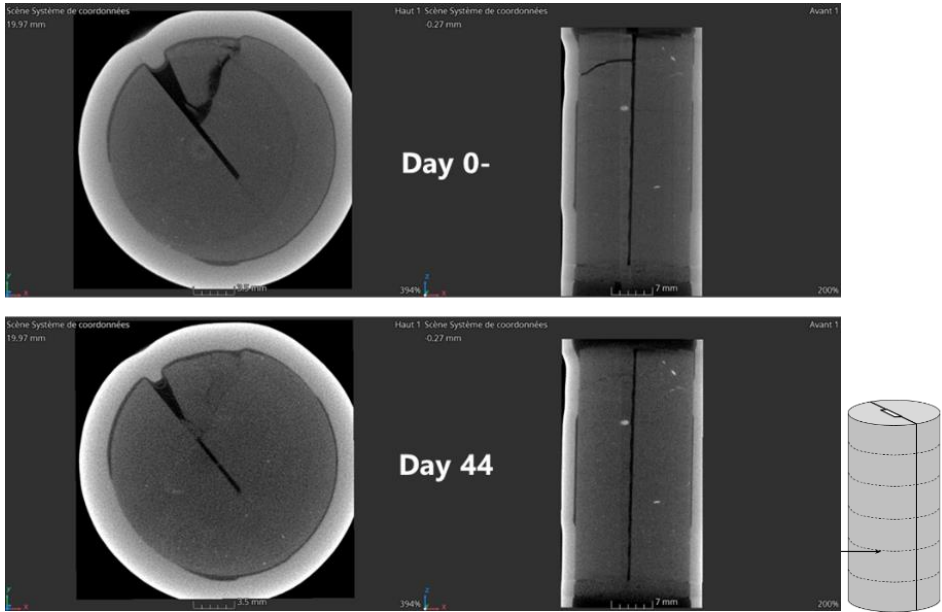


Figure 3-11 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST63744-11 montrant l'évolution d'une coupe transversale et longitudinale de la fissure avec le temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 20°C (Jour 0- : après la charge hydrostatique).

La Figure 3-12 illustre l'évolution du volume de la fracture obtenue à partir de l'analyse des images de tomographie 3D aux rayons X réalisée sur l'échantillon parallèle EST63744-7. Avant la saturation en eau (juste après la charge hydrostatique), le volume de la fracture était de 67,7 mm³. Juste après la saturation de la fissure, il a chuté à 64,9 mm³. Après 35 jours, le volume s'est réduit à 33,5 mm³. L'auto-colmatage a d'abord été rapide, puis modéré. La Figure 3-13 montre l'évolution d'une coupe transversale et longitudinale de la fissure au début et après 35 jours d'essai. On peut observer que l'auto-colmatage entraîne une réduction de la fissure sur l'échantillon orienté parallèlement au plan de stratification.

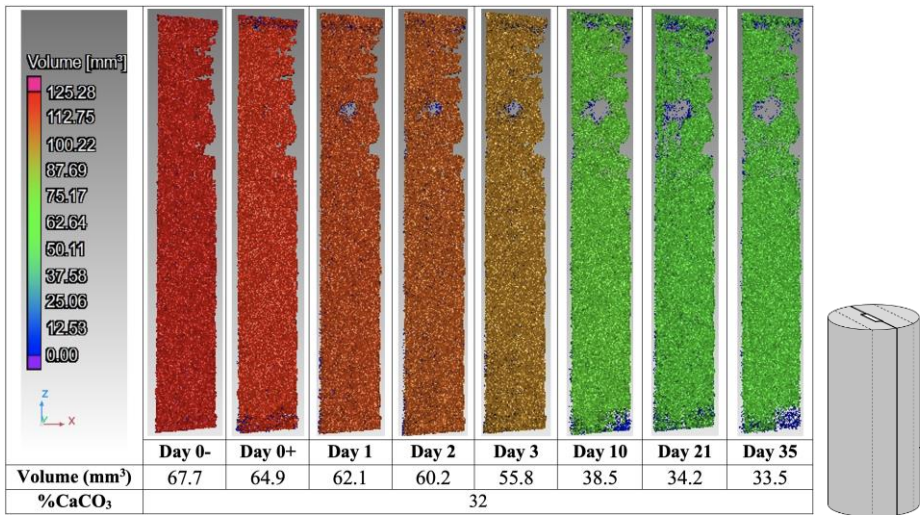


Figure 3-12 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon parallèle EST63744-7 montrant l'évolution du volume de la fissure en fonction du temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 20°C (Jour 0- : après la charge hydrostatique ; Jour 0+ : après la saturation de la fissure) (Agboli *et al.*, 2023).

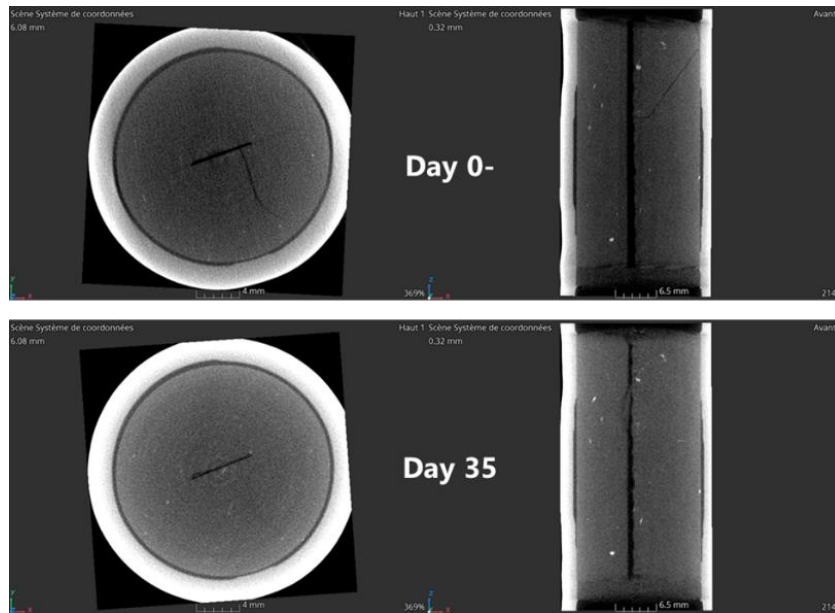


Figure 3-13 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon parallèle EST63744-7 montrant l'évolution d'une coupe transversale et longitudinale de la fissure avec le temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 20°C (Jour 0- : après la charge hydrostatique).

Tout d'abord, il convient de noter que le chargement hydrostatique à une pression de confinement de 4 MPa induit une fermeture partielle de la fissure initiale. Cette fermeture mécanique est supposée plus efficace pour l'échantillon parallèle, en raison de l'orientation des minéraux argileux. La saturation de l'échantillon induit également une fermeture partielle de la fissure initiale. Contrairement à ce qui était supposé, le processus d'auto-colmatage ne semble pas plus efficace pour l'échantillon parallèle, c'est-à-dire lorsque le plan de litage (et l'alignement des minéraux argileux) est parallèle à l'axe de l'échantillon et à la surface de la fracture artificielle.

La Figure 3-14 présente la variation relative du volume des fissures de l'échantillon parallèle EST63744-7 et de l'échantillon perpendiculaire EST63744-11 au cours de l'essai d'auto-colmatage. Le Tableau 3-6 récapitule les mesures effectuées pour observer l'influence de l'orientation.

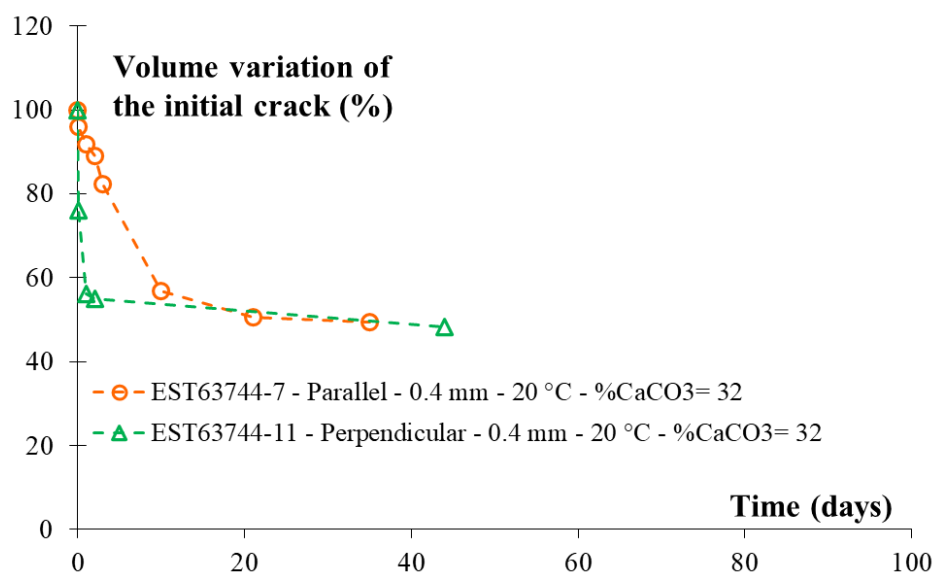


Figure 3-14 : Pourcentage de variation du volume de la fissure initiale (normalisé avec le volume après chargement hydrostatique) obtenu à partir des images 3D de tomographie à rayons X pendant les tests d'auto-colmatage à l'eau réalisés sur les échantillons parallèle EST66744-7 et perpendiculaire EST66744-11.

Tableau 3-6 : Synthèse de mesures effectuées pour l'étude de l'influence de l'orientation.

Echantillon	Orientation	%CaCO ₃	Volume initial (mm ³)	Volume final (mm ³)	%Fissure	Perméabilité initiale (m ²)	Perméabilité finale (m ²)	Température (°C)
EST63744-11	⊥	32	126,2	60,8	48	4,12 x 10 ⁻¹⁷	1,07 x 10 ⁻¹⁸	20
EST63744-7	//	32	67,7	33,5	50	3,42 x 10 ⁻¹⁶	2,04 x 10 ⁻¹⁷	20

3.6.2. Influence du taux de carbonate sur le processus d'auto-colmatage

Pour observer l'influence de la composition minéralogique (teneur en calcite) du COx sur le processus d'auto-colmatage, plusieurs essais ont été réalisés sur des carottes avec une ouverture de fissure artificielle de 400 µm, une orientation perpendiculaire, mais avec des teneurs en carbonates différentes. L'essai d'auto-colmatage réalisé sur l'échantillon EST59996-71 avec une orientation perpendiculaire et une teneur en carbonate de calcium très élevée de 68,1 % (ouverture de fissure = 400 µm) a duré 42 jours. La Figure 3-15 montre l'évolution de la géométrie de la fracture obtenue à partir de l'analyse des images de tomographie 3D aux rayons X. Avant la saturation en eau (juste après la charge hydrostatique), le volume de la fracture était égal à 111 mm³. Juste après la saturation de la fissure, il est tombé à 98 mm³. Après 14 jours d'expérience d'auto-colmatage, le volume a légèrement diminué (87 mm³). Après 42 jours, le volume était de 84 mm³. L'auto-colmatage a donc été très modéré, et la fracture est restée largement ouverte, comme l'illustre la Figure 3-16, montrant l'évolution de la coupe transversale et longitudinale de la fissure au début et après 42 jours d'essai. Par conséquent, aucune mesure de la perméabilité à l'eau de la fracture n'a pu être effectuée en raison d'un débit trop rapide.

L'essai d'auto-colmatage réalisé sur l'éprouvette EST60007-71 avec une orientation perpendiculaire et une teneur élevée en carbonate de calcium de 52,8 % (ouverture de fissure = 400 µm) a duré 25 jours. La Figure 3-17 montre l'évolution de la géométrie de la fracture obtenue à partir de l'analyse des images de tomographie 3D aux rayons X. Le test d'auto-colmatage a également été très modéré pour cet échantillon orienté perpendiculairement et la fracture est restée globalement ouverte (Figure 3-18), comme pour l'échantillon très carbonaté EST59996-71. Par conséquent, aucune mesure de perméabilité à l'eau de la fracture n'a pu être réalisée pour cet échantillon carbonaté.

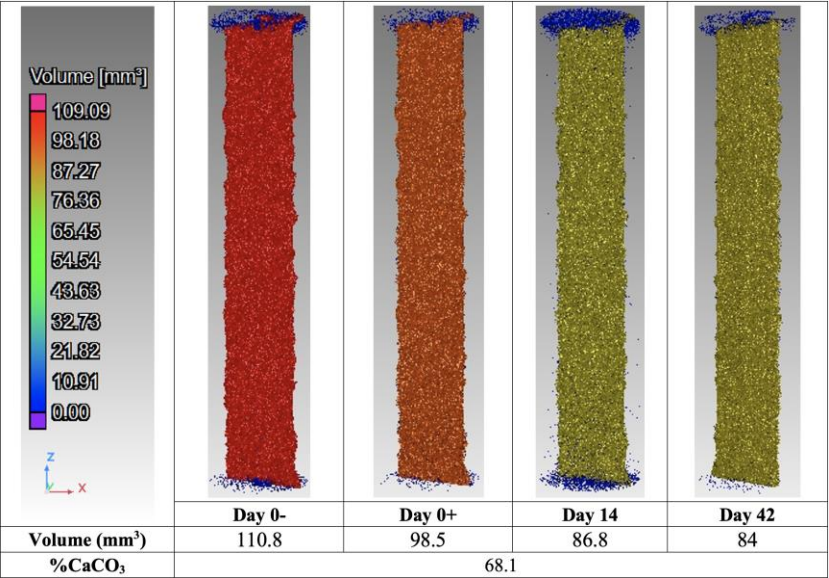


Figure 3-15 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST59996-71 montrant l'évolution du volume de la fissure en fonction du temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 20°C (Jour 0- : après la charge hydrostatique ; Jour 0+ : après la saturation de la fissure) (Agboli *et al.*, 2023).

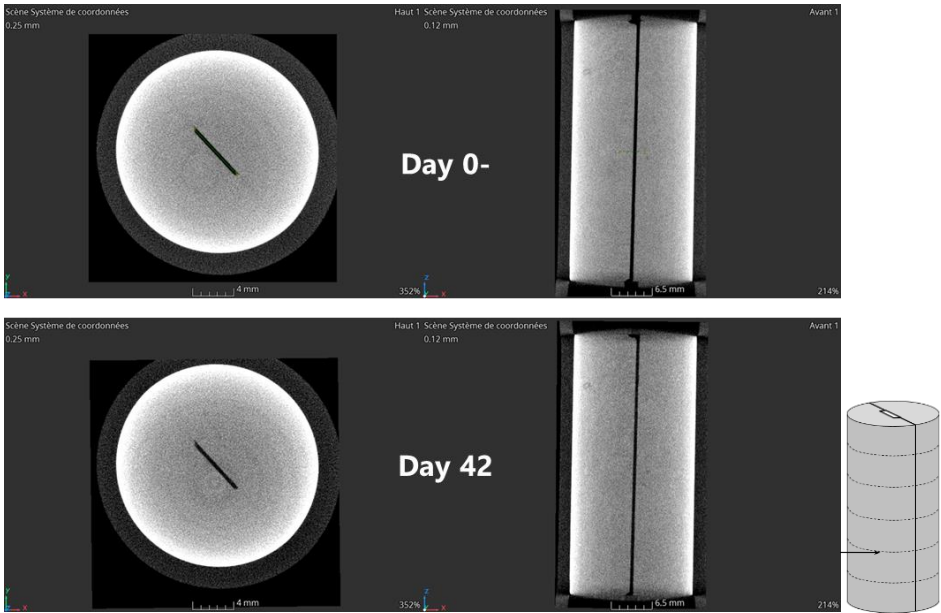


Figure 3-16 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST59996-71 montrant l'évolution d'une coupe transversale et longitudinale de la fissure avec le temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 20°C (Jour 0- : après la charge hydrostatique).

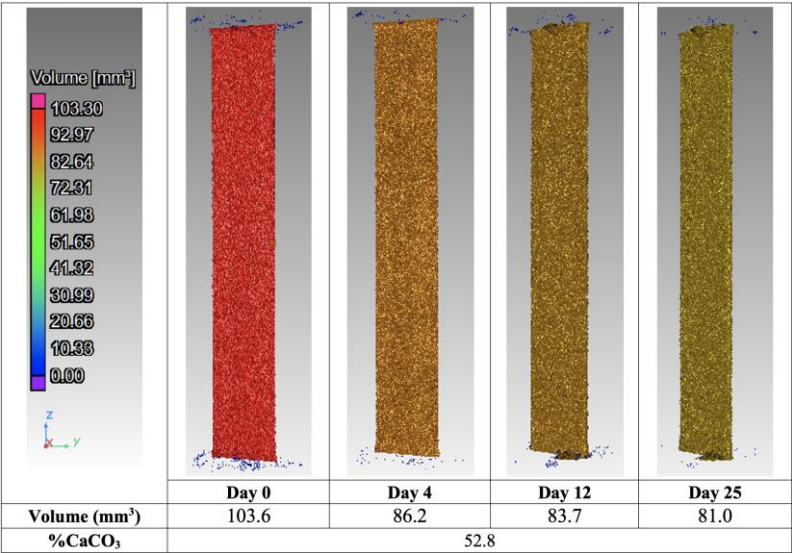


Figure 3-17 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST60007-71 montrant l'évolution du volume de la fissure en fonction du temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 20°C (Jour 0 : après la charge hydrostatique) (Agboli *et al.*, 2023).

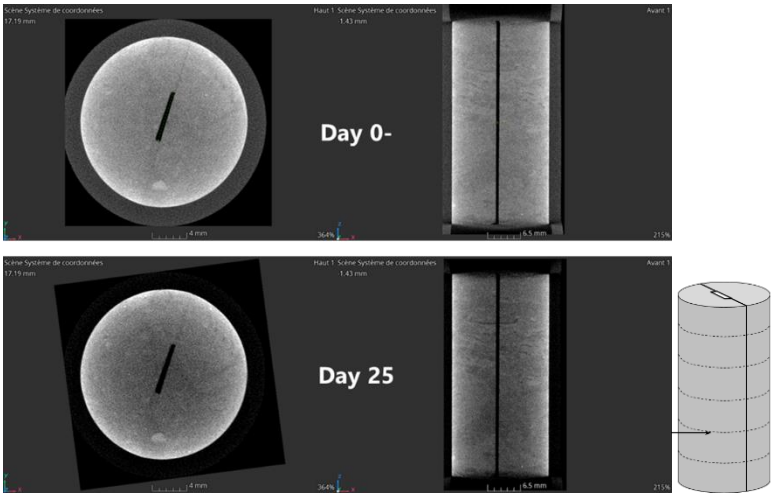


Figure 3-18 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST60007-71 montrant l'évolution d'une coupe transversale et longitudinale de la fissure avec le temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 20°C (Jour 0- : après la charge hydrostatique).

L'essai d'auto-colmatage réalisé sur l'éprouvette EST60018-71 avec une orientation perpendiculaire et une très faible teneur en carbonate de calcium de 5,3 % (ouverture de fissure = 400 µm) a duré 21 jours. Le colmatage très rapide a induit le bouchage du capillaire d'entrée, rendant impossible la poursuite de l'injection d'eau et la mesure de perméabilité, et a stoppé le processus d'auto-colmatage. La Figure 3-19 montre l'évolution de la géométrie de la fracture obtenue à partir de l'analyse des images de tomographie à rayons X en 3D. Avant la saturation en eau (juste après la charge hydrostatique), le volume de la fracture était égal à 60 mm³. Immédiatement après la saturation en eau, le volume de la fracture a été réduit à 40 mm³ et n'a pas changé jusqu'à la fin de l'essai, en raison de l'obturation du capillaire à la suite de l'effondrement de la fissure dû au gonflement rapide des minéraux argileux comme on peut le voir sur la Figure 3-20.

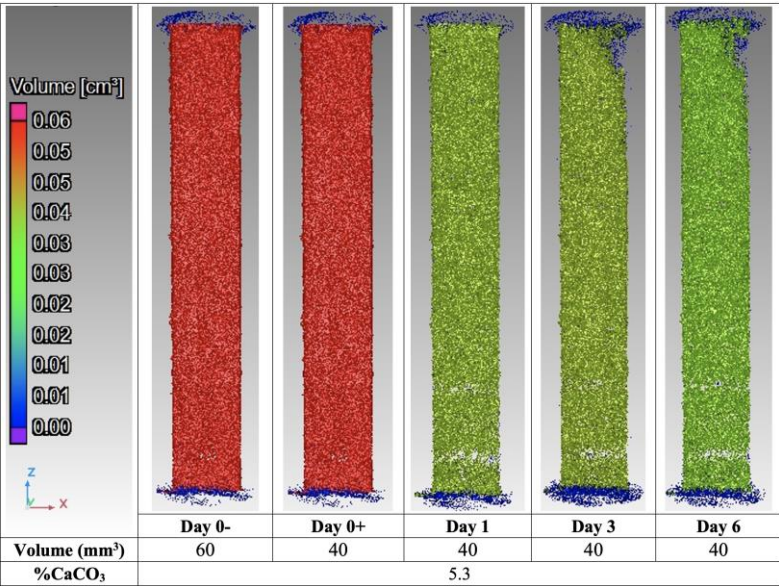


Figure 3-19 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST60018-71 montrant l'évolution du volume de la fissure en fonction du temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 20°C (Jour 0- : après chargement hydrostatique ; Jour 0+ : après saturation de la fissure) (Agboli *et al.*, 2023).

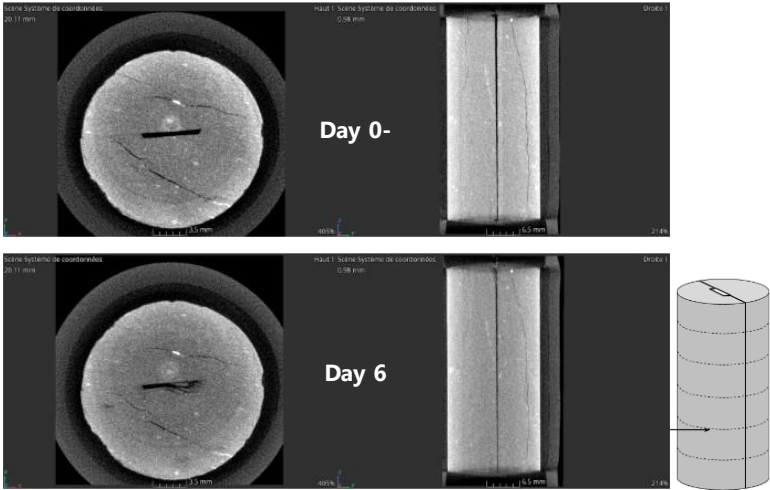


Figure 3-20 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST60018-71 montrant l'évolution d'une coupe transversale et longitudinale de la fissure avec le temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 20°C (Jour 0- : après la charge hydrostatique).

D'après ces résultats, il semble évident que la teneur en calcite a un fort impact sur le processus d'auto-colmatage dans l'argilite. Le Tableau 3-7 récapitule les mesures effectuées pour observer l'influence du taux de carbonate.

Tableau 3-7 : Synthèse de mesures effectuées pour l'étude de l'influence du taux de carbonate.

Echantillon	Orientation	%CaCO ₃	Volume initial (mm ³)	Volume final (mm ³)	%Fissure	Perméabilité initiale (m ²)	Perméabilité finale (m ²)	Température (°C)
EST59996-71	⊥	68,1	110,8	84	67	X	X	20
EST60007-71	⊥	52,8	103,6	81	78	X	X	20
EST60018-71	⊥	5,3	60	40	67	X	X	20

3.6.3. *Influence de l'ouverture de la fissure sur le processus d'auto-colmatage*

L'influence de l'ouverture de la fissure a été étudiée en réalisant des essais d'auto-colmatage sur des échantillons argileux ayant la même faible teneur en carbonate ($\sim 20\%$), la même orientation parallèle, mais avec des largeurs de fissure différentes. Le premier EST60766-3 a une ouverture de fissure artificielle de $400\ \mu\text{m}$ et une teneur en carbonate de 21% . Le second échantillon EST62690-2 a une ouverture de fissure de $800\ \mu\text{m}$ et une teneur en carbonate de $20,6\%$. L'évolution de la perméabilité à l'eau et des volumes de fissures de ces deux échantillons est représentée dans les Figure 3-21 à 3-26.

On constate que plus l'ouverture initiale de la fissure est petite, plus la perméabilité à l'eau diminue rapidement. En effet, la perméabilité de l'échantillon EST60766-3 avec une ouverture de fissure initiale de $0,4\ \text{mm}$ est passée de 10^{-17} à $10^{-18}\ \text{m}^2$ en 20 jours, tandis que la perméabilité de l'échantillon EST62690-2 avec une ouverture de fissure initiale de $0,8\ \text{mm}$ est passée de 10^{-15} à moins de $10^{-18}\ \text{m}^2$ en 41 jours. En ce qui concerne l'échantillon EST62690-2, les données de perméabilité sont manquantes du jour 26 au jour 40 en raison d'un problème technique. Une dernière mesure de perméabilité a été effectuée le jour 41 et le test a été arrêté. À la fin de cette expérience, la perméabilité est encore plus faible que celle de l'échantillon EST60766-3. Les images de tomographie à rayons X montrent que plus l'ouverture initiale de la fissure est petite, plus la fissure se referme rapidement. De même, à la fin de l'expérience, la fissure est plus fermée dans l'échantillon EST60766-3 (Figure 3-23) avec une ouverture de fissure initiale de $0,4\ \text{mm}$ que dans l'échantillon EST62690-2 (Figure 3-25) avec une ouverture de fissure initiale de $0,8\ \text{mm}$. Ces résultats semblent évidents car il faut plus de temps pour remplir un plus grand volume. Cependant, il convient de souligner que le mécanisme d'auto-colmatage est toujours efficace même pour une fracture large (bien que cela prenne un peu plus de temps), en particulier pour ces deux échantillons qui ont une faible teneur en carbonate ($\sim 20\%$).

En général, la perméabilité à l'eau diminue rapidement au cours des premières heures d'injection, suivie d'une diminution plus lente. Cependant, la perméabilité initiale de l'argilite saine (c'est-à-dire initiale) n'est jamais retrouvée. La perméabilité à l'eau finale est de l'ordre de 10^{-18} - $10^{-19}\ \text{m}^2$ et elle est supérieure de près de 2 ordres de grandeur à la valeur de la perméabilité intrinsèque de l'argilite saine COx qui est estimée entre 10^{-21} et $10^{-20}\ \text{m}^2$, selon l'orientation de l'échantillon (ANDRA 2005 ; Escoffier 2002 ; Giot et al. 2011, 2012, 2014 ; Homand et al. 2004). Concernant le volume de la fissure, le processus d'auto-colmatage induit une réduction significative mais la fissure n'est jamais complètement fermée, du moins pendant la durée de nos essais.

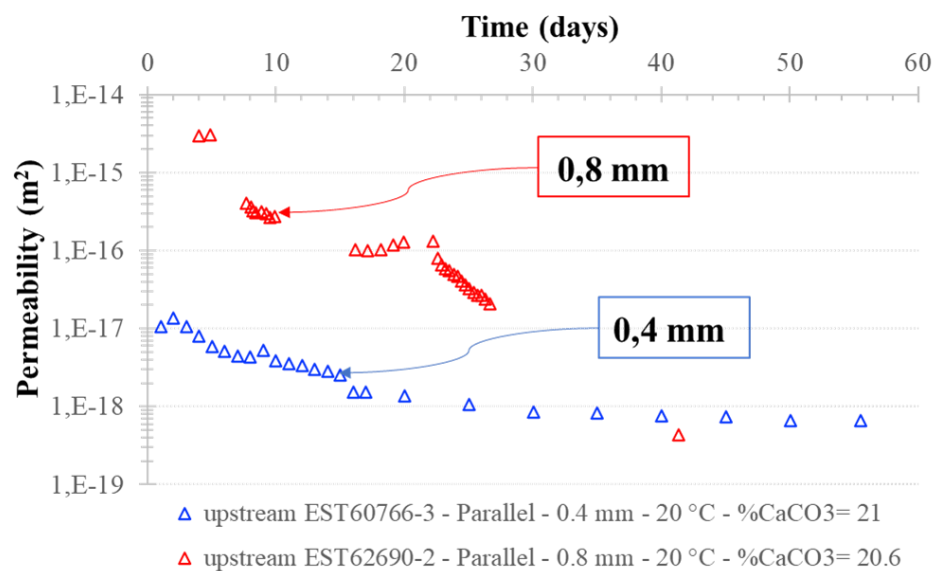


Figure 3-21 : Évolution de la perméabilité à l'eau en amont de l'échantillon parallèle EST60766-3 (ouverture = 0,4 mm) et de l'échantillon parallèle EST62690-2 (ouverture = 0,8mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 20°C (Agboli *et al.*, 2023).

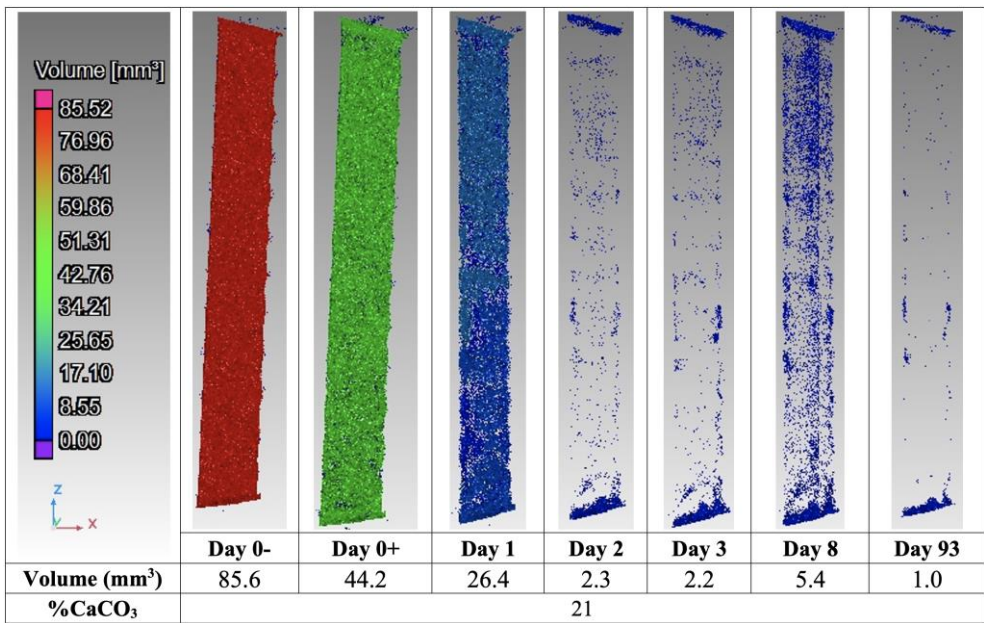


Figure 3-22 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon parallèle EST60766-03 montrant l'évolution du volume de la fissure en fonction du temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 20°C (Jour 0- : après la charge hydrostatique ; Jour 0+ : après la saturation de la fissure) (Agboli *et al.*, 2023).

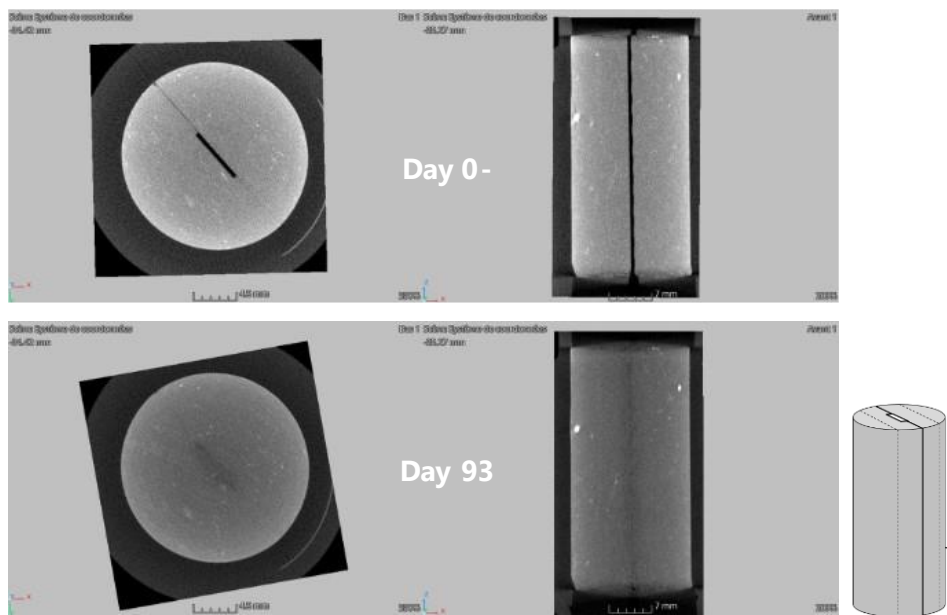


Figure 3-23 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon parallèle EST60766-03 montrant l'évolution d'une coupe transversale et longitudinale de la fissure avec le temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 20°C (Jour 0- : après la charge hydrostatique).

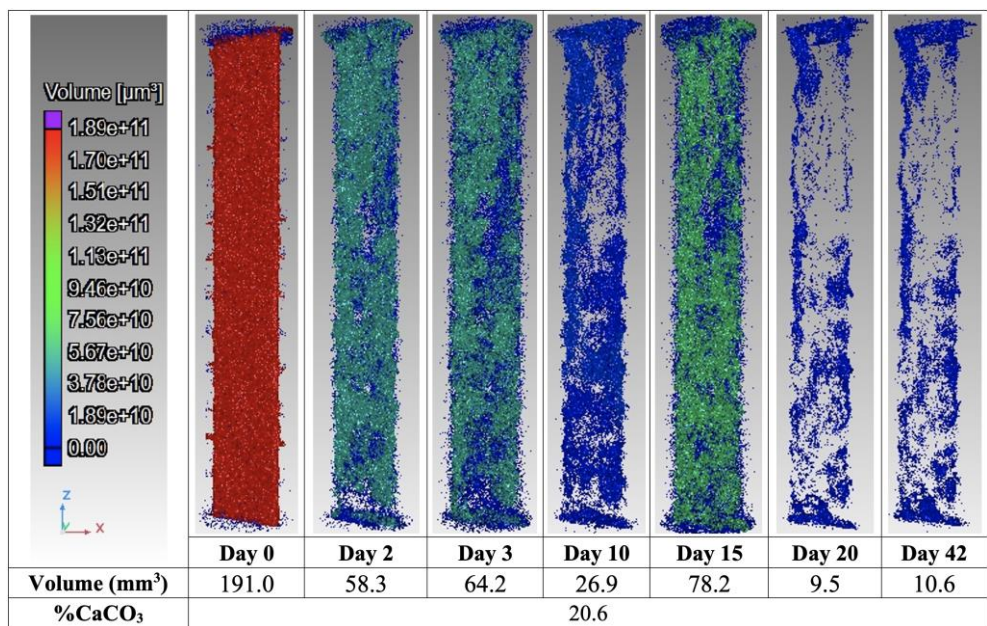


Figure 3-24 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon parallèle EST62690-02 montrant l'évolution du volume de la fissure en fonction du temps (ouverture initiale de la fissure = 0,8 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 20°C (Jour 0 : après la charge hydrostatique) (Agboli *et al.*, 2023).

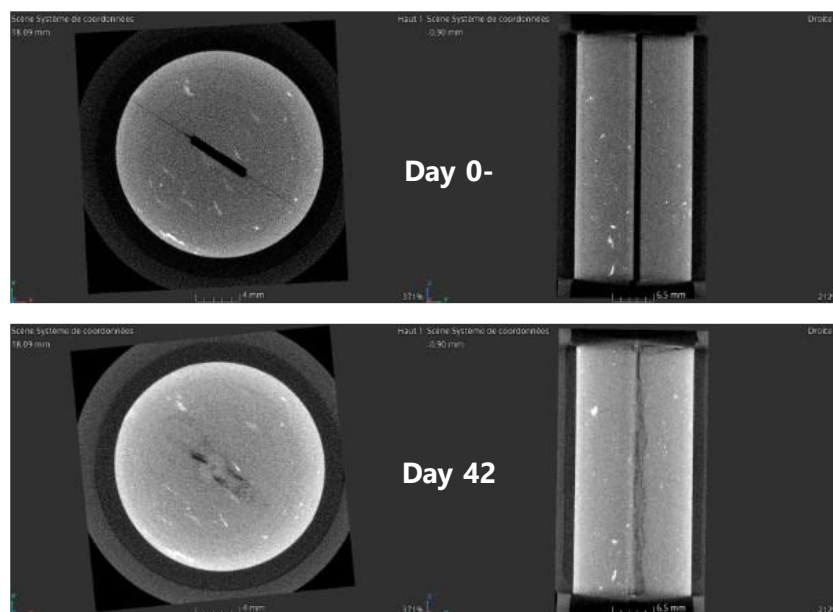


Figure 3-25 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon parallèle EST62690-02 montrant l'évolution d'une coupe transversale et longitudinale de la fissure avec le temps (ouverture initiale de la fissure = 0,8 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 20°C (Jour 0- : après la charge hydrostatique).

La Figure 3-26 présente la variation relative du volume des fissures des échantillons parallèle EST60766-03 et EST62690-02 au cours de l'essai d'auto-colmatage. Le Tableau 3-8 récapitule les mesures effectuées pour observer l'influence de l'ouverture des fissures.

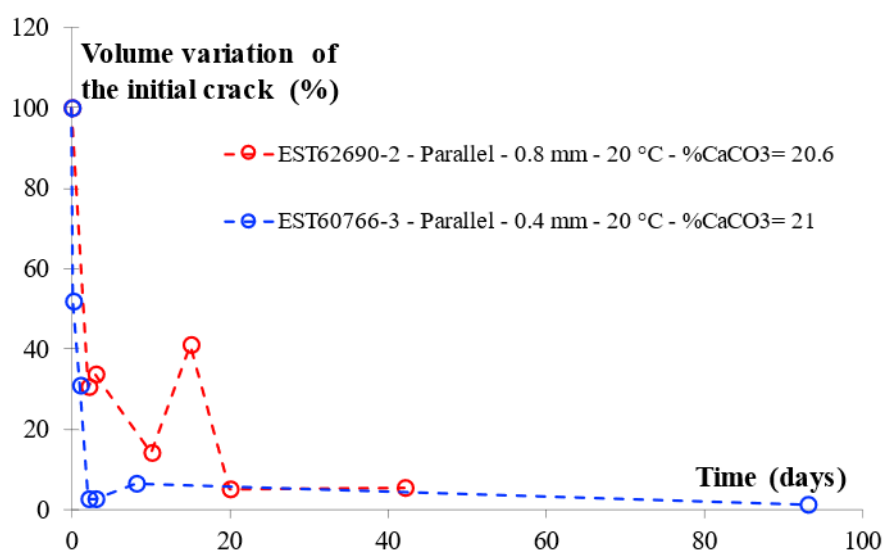


Figure 3-26 : Pourcentage de variation du volume de la fissure initiale (normalisé avec le volume après chargement hydrostatique) obtenu à partir des images 3D de tomographie à rayons X pendant les tests d'auto-colmatage à l'eau réalisés sur les échantillons parallèle EST62690-02 et EST60766-03.

Tableau 3-8 : Synthèse de mesures effectuées pour l'étude de l'influence de l'ouverture des fissures.

Echantillon	Orientation	%CaCO ₃	Volume initial (mm ³)	Volume final (mm ³)	%Fissure	Perméabilité initiale (m ²)	Perméabilité finale (m ²)	Température (°C)
EST60766-03 (ouverture = 0,4 mm)	//	21	85,6	1	1	1,06 x 10 ⁻¹⁷	6,54 x 10 ⁻¹⁹	20
EST62690-02 (ouverture = 0,8 mm)	//	20,6	191	10,6	6	2,97 x 10 ⁻¹⁵	4,4 x 10 ⁻¹⁹	20

3.6.4. Influence de la température sur le processus d'auto-colmatage

L'influence de la température sur le processus d'auto-colmatage a été étudiée en réalisant des tests d'auto-colmatage à des températures allant jusqu'à 80 °C selon le protocole décrit précédemment. L'évolution de la perméabilité à l'eau au cours des essais d'auto-colmatage réalisés sur l'échantillon parallèle EST66418-10 (%CaCO₃ = 25,4) à 80 °C et sur l'échantillon parallèle EST66727-05 (%CaCO₃ = 21) à 40 °C est présentée à la Figure 3-27. Seule la courbe en amont a été représentée (la courbe en aval est presque la même) et elle a été comparée à la courbe en amont de l'échantillon EST60766-3 (également représentée dans la Figure 3-27), qui est un échantillon similaire mais réalisé à la température ambiante (20 °C). Une augmentation de la perméabilité à l'eau juste après le chauffage à 80 °C est observée pour l'échantillon EST66418-10, suivie d'une diminution rapide puis modérée de la perméabilité à l'eau. Juste après cette diminution rapide, la chute de la perméabilité à l'eau suit ensuite le schéma de chute de la perméabilité à l'eau observé dans les autres tests à température ambiante (par exemple, l'échantillon EST60766-3). En ce qui concerne l'échantillon EST66727-05 testé à 40 °C, la perméabilité à l'eau évolue presque de la même manière que pour l'échantillon EST60766-3 testé à 20 °C. Les Figure 3-28 et 3-29 montrent l'évolution de la géométrie de la fracture obtenue à partir des données de la tomographie 3D aux rayons X sur l'échantillon EST66418-10 traité à 80 °C. Avant la saturation en eau (juste après la charge hydrostatique), le volume de la fracture était égal à 60 mm³. Après 37 jours d'expérience d'auto-colmatage, le volume a diminué jusqu'à 10 mm³. Les Figure 3-30 et 3-31 montre l'évolution de la géométrie de la fracture obtenue à partir des données de la tomographie 3D aux rayons X sur l'échantillon EST66727-05 testé à 40 °C. Avant la saturation en eau (juste après la charge hydrostatique), le volume de la fracture était égal à 69 mm³. Juste après la saturation de la fissure, il est tombé à environ 40 mm³. Après 35 jours d'expérience d'auto-colmatage, le volume a diminué jusqu'à seulement 2 mm³.

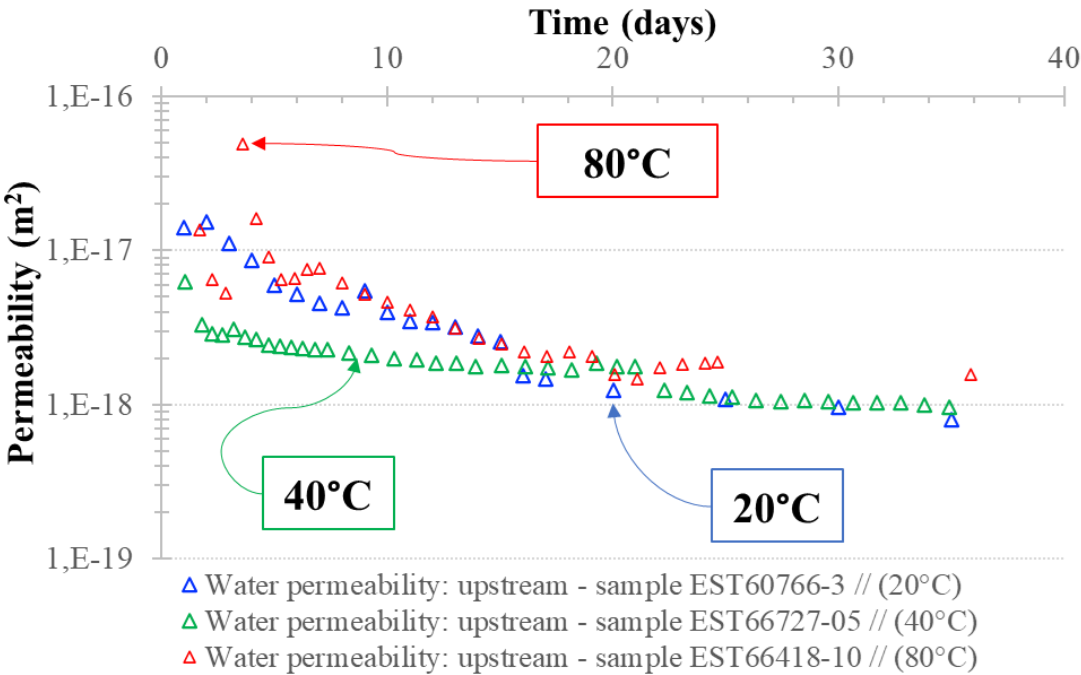


Figure 3-27 : Évolution de la perméabilité à l'eau lors des essais d'auto-colmatage sur l'échantillon parallèle EST66418-10 à 80°C et sur l'échantillon parallèle EST66727-05 à 40 °C, par rapport à l'échantillon parallèle EST60766-3 à 20°C.

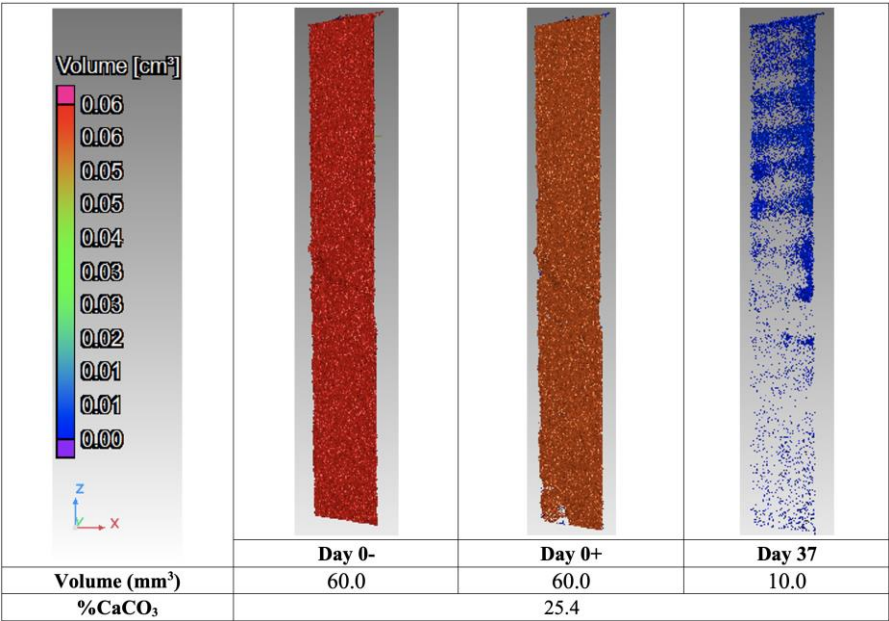


Figure 3-28 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon parallèle EST66418-10 montrant l'évolution du volume de la fissure dans le temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) au cours d'un essai d'auto-colmatage à 80 °C (Jour 0- : après la charge hydrostatique ; Jour 0+ : après la saturation de la fissure) (Agboli *et al.*, 2023).

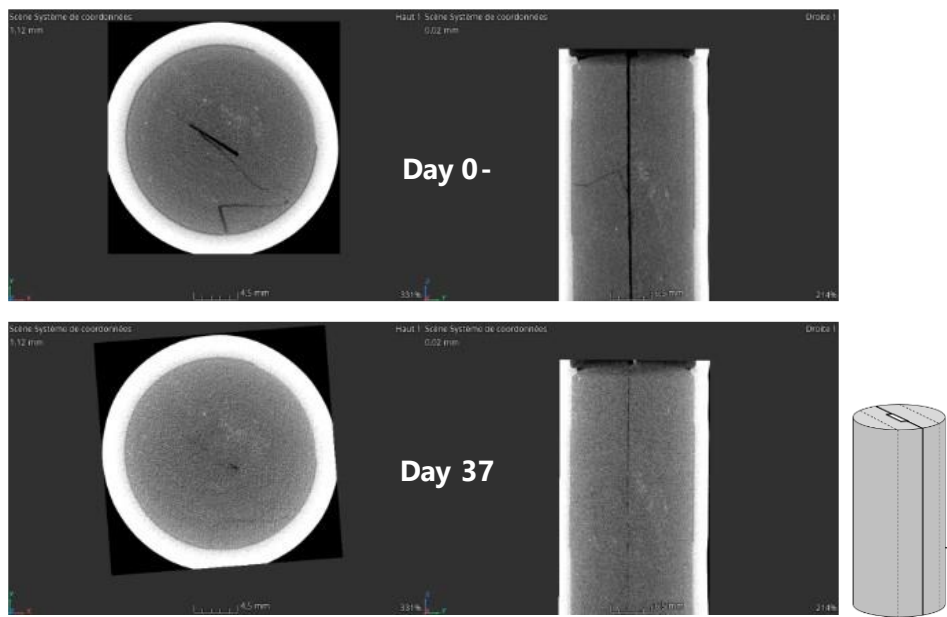


Figure 3-29 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon parallèle EST66418-10 montrant l'évolution d'une coupe transversale et longitudinale de la fissure avec le temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 80°C (Jour 0- : après la charge hydrostatique).

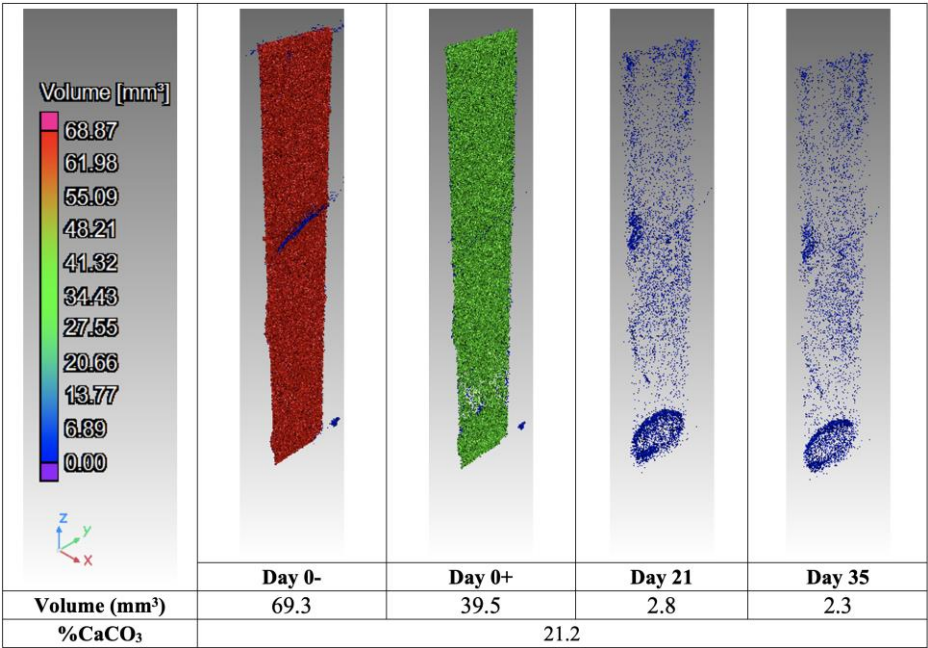


Figure 3-30 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon parallèle EST66727-05 montrant l'évolution du volume de la fissure dans le temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) au cours d'un essai d'auto-colmatage à 40 °C (Jour 0- : après la charge hydrostatique ; Jour 0+ : après la saturation de la fissure).

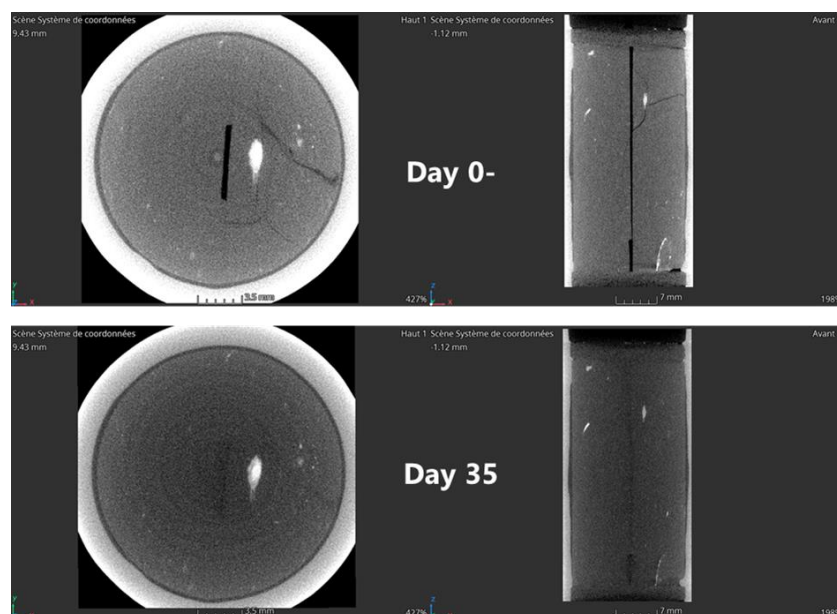


Figure 3-31 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon parallèle EST66727-05 montrant l'évolution d'une coupe transversale et longitudinale de la fissure avec le temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 40°C (Jour 0- : après la charge hydrostatique).

La Figure 3-32 présente la variation relative du volume des fissures des échantillons parallèle au cours des essais d'auto-colmatage réalisé à 20°C (EST60766-03), 40°C (EST66727-05), et 80°C (EST66418-10). Le Tableau 3-9 récapitule les mesures effectuées pour observer l'influence de la température sur l'orientation parallèle.

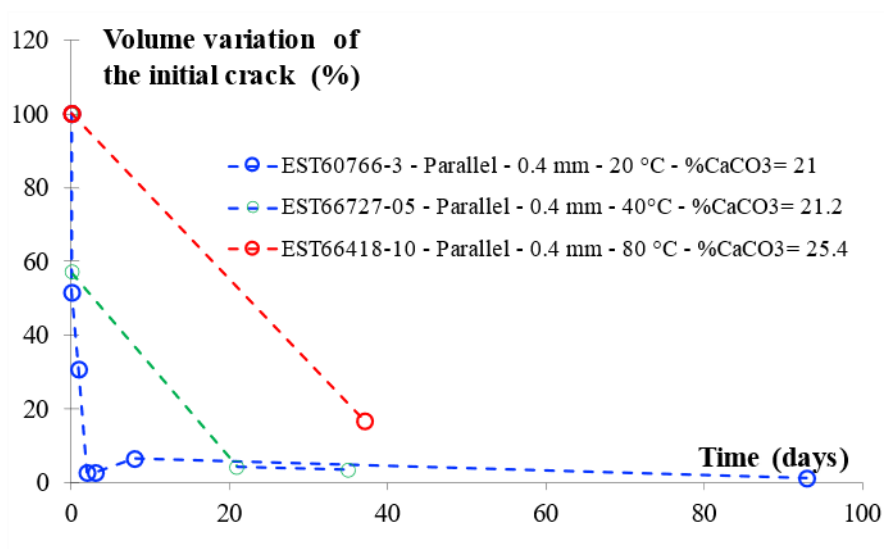


Figure 3-32 : Pourcentage de variation du volume de la fissure initiale (normalisé avec le volume après chargement hydrostatique) obtenu à partir des images 3D de tomographie à rayons X pendant les tests d'auto-colmatage à l'eau réalisés sur les échantillons parallèle EST60766-03, EST66727-05, et EST66418-10.

Tableau 3-9 : Synthèse de mesures effectuées pour l'étude de l'influence de la température sur l'orientation parallèle.

Echantillon	Orientation	%CaCO ₃	Volume initial (mm ³)	Volume final (mm ³)	%Fissure	Perméabilité initiale (m ²)	Perméabilité finale (m ²)	Température (°C)
EST60766-03	//	21	85,6	1	1	1,06 x 10 ⁻¹⁷	6,54 x 10 ⁻¹⁹	20
EST66727-05	//	21,2	69,28	2,27	3	6,27 x 10 ⁻¹⁸	9,65 x 10 ⁻¹⁹	40
EST66418-010	//	25,4	60	10	17	1,36 x 10 ⁻¹⁷	1,56 x 10 ⁻¹⁸	80

Concernant l'orientation perpendiculaire, la variation de la perméabilité à l'eau au cours des essais d'auto-colmatage effectués sur l'échantillon EST66703-13 (%CaCO₃ = 26,5) à 80 °C et sur l'échantillon EST66703-12 (%CaCO₃ = 26,5) à 40 °C est illustrée dans la Figure 3-33. Seule la courbe amont est présentée (la courbe aval étant pratiquement identique) et a été comparée à la courbe amont de l'échantillon EST66697-18 (%CaCO₃ = 26,8) à 20 °C, également représentée dans la Figure 3-33. On observe une augmentation de la perméabilité à l'eau juste après le chauffage à 80 °C de l'échantillon EST66703-13, suivie d'une diminution rapide puis modérée de cette perméabilité. Cette diminution suit le schéma observé dans d'autres tests à température ambiante (par exemple, l'échantillon EST66697-18). Pour l'échantillon EST66703-12 testé à 40 °C, la perméabilité à l'eau évolue presque de la même manière que pour l'échantillon EST66697-18 testé à 20 °C. Les Figure 3-34 et 3-35 illustrent la variation de la géométrie de la fracture obtenue à partir des données de la tomographie à rayons X 3D sur l'échantillon EST66703-13 testé à 80°C. Avant la saturation en eau (juste après la charge hydrostatique), le volume de la fracture était de 85,09 mm³. Après la saturation de la fissure, il a diminué à environ 61,78 mm³. Après 28 jours d'expérience d'auto-colmatage, le volume a continué de diminuer jusqu'à 16,23 mm³. La Figure 3-36 et 3-37 montrent l'évolution de la géométrie de la fracture obtenue à partir des données de la tomographie 3D aux rayons X sur l'échantillon EST66703-12 testé à 40 °C. Avant la saturation en eau, le volume de la fracture était de 85,12 mm³, chutant à environ 74,98 mm³ après la saturation, puis diminuant à 15,42 mm³ après 27 jours d'expérience d'auto-colmatage. La Figure 3-38 et 3-39 présentent l'évolution de la géométrie de la fracture obtenue à partir des données de la tomographie 3D aux rayons X sur l'échantillon EST66697-18 testé à 20 °C. Avant la saturation en eau, le volume de la fracture était de 76,04 mm³. Après la saturation, il a chuté à environ 54,85 mm³, puis a continué de diminuer jusqu'à 18,82 mm³ après 32 jours d'essai d'auto-colmatage.

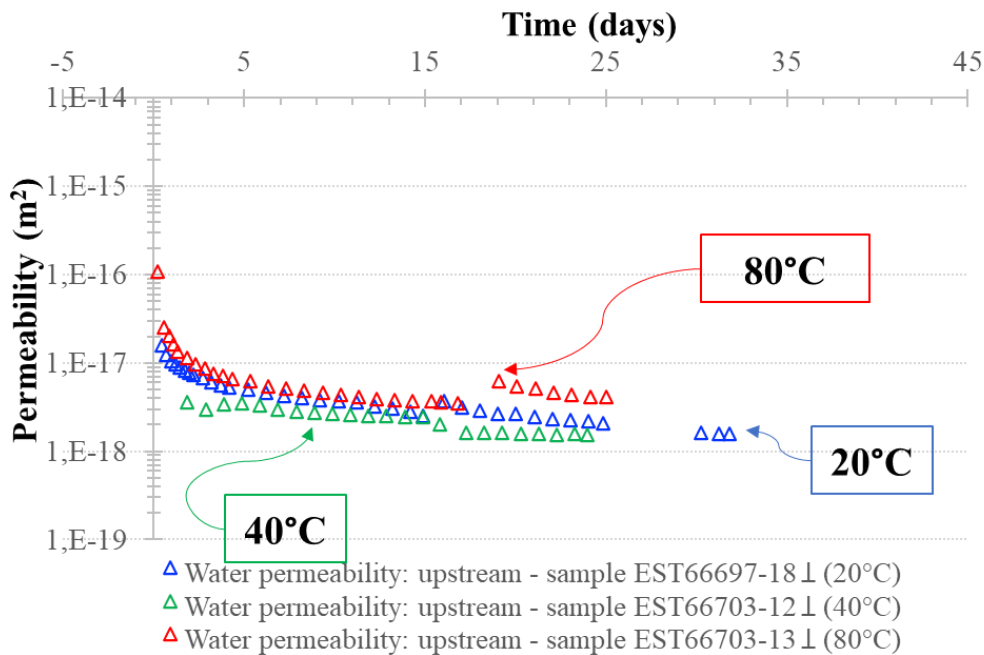


Figure 3-33 : Évolution de la perméabilité à l'eau lors des essais d'auto-colmatage sur l'échantillon perpendiculaire EST66703-13 à 80°C et sur l'échantillon perpendiculaire EST66703-12 à 40 °C, par rapport à l'échantillon perpendiculaire EST66697-18 à 20°C.

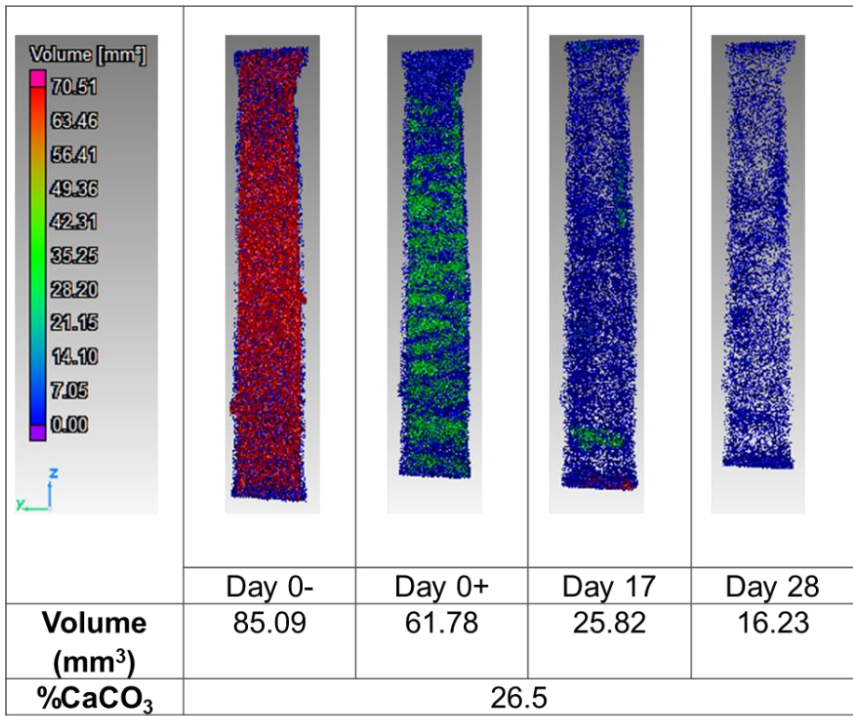


Figure 3-34 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST66703-13 montrant l'évolution du volume de la fissure dans le temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) au cours d'un essai d'auto-colmatage à 80 °C (Jour 0- : après chargement hydrostatique ; Jour 0+ : après saturation de la fissure).

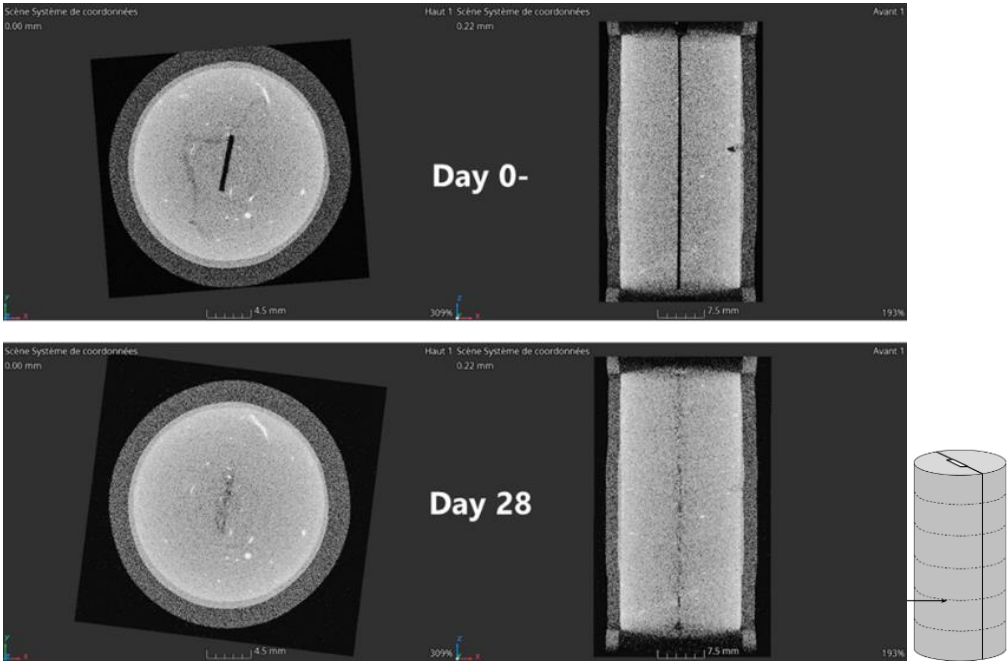


Figure 3-35 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST66703-13 montrant l'évolution d'une coupe transversale et longitudinale de la fissure avec le temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 80°C (Jour 0- : après la charge hydrostatique).

Volume [mm³] 59.65 53.69 47.72 41.76 35.79 29.83 23.86 17.90 11.93 5.97 0.00 z y	Day 0-	Day 0+	Day 16	Day 27
Volume (mm³)	85.12	74.98	31.43	15.42
%CaCO₃	26.5			

Figure 3-36 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST66703-12 montrant l'évolution du volume de la fissure dans le temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) au cours d'un essai d'auto-colmatage à 40 °C (Jour 0- : après chargement hydrostatique ; Jour 0+ : après saturation de la fissure).

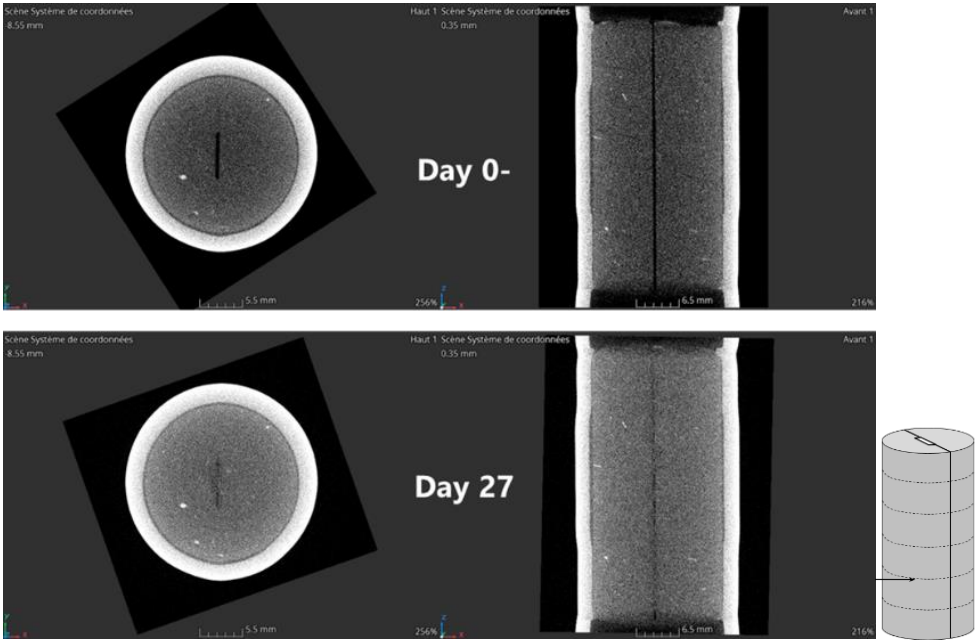


Figure 3-37 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST66703-12 montrant l'évolution d'une coupe transversale et longitudinale de la fissure avec le temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 40°C (Jour 0- : après la charge hydrostatique).

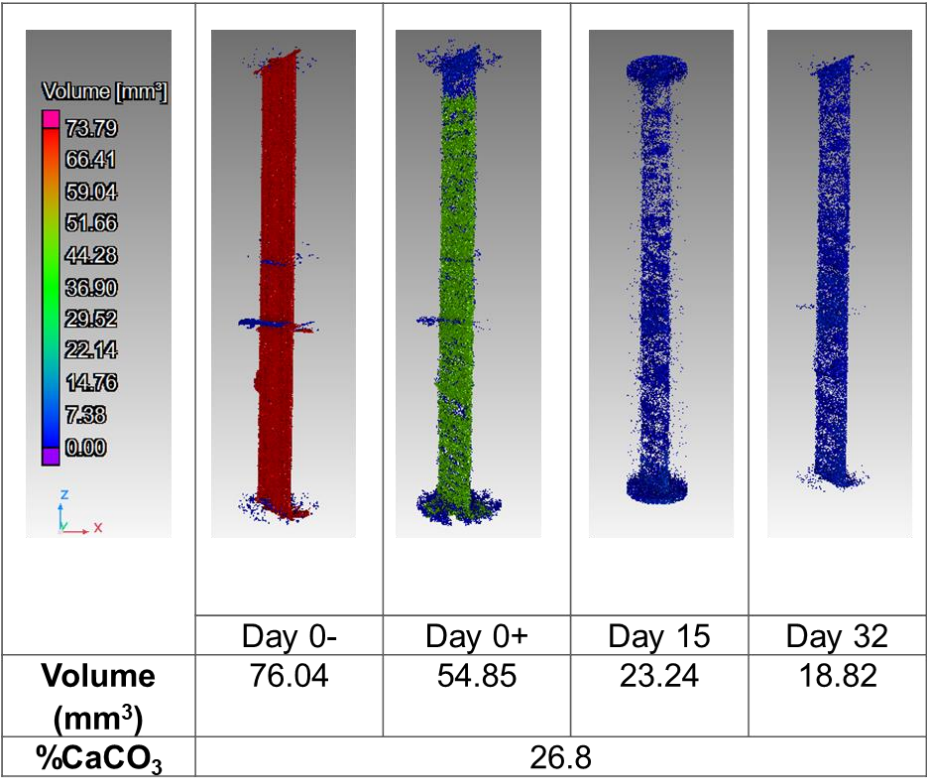


Figure 3-38 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST66697-18 montrant l'évolution du volume de la fissure dans le temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) au cours d'un essai d'auto-colmatage à 20 °C (Jour 0- : après chargement hydrostatique ; Jour 0+ : après saturation de la fissure).

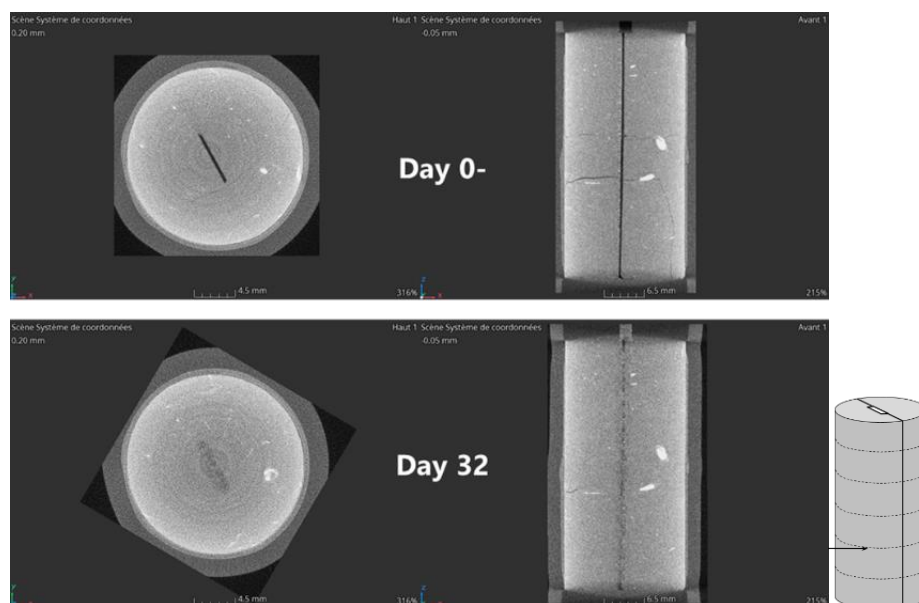


Figure 3-39 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST66697-18 montrant l'évolution d'une coupe transversale et longitudinale de la fissure avec le temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à 20°C (Jour 0- : après la charge hydrostatique).

La Figure 3-40 présente la variation relative du volume des fissures des échantillons parallèle au cours des essais d'auto-colmatage réalisé à 20°C (EST66697-18), 40°C (EST66703-12), et 80°C (EST66703-13). Le Tableau 3-10 récapitule les mesures effectuées pour observer l'influence de la température sur l'orientation perpendiculaire.

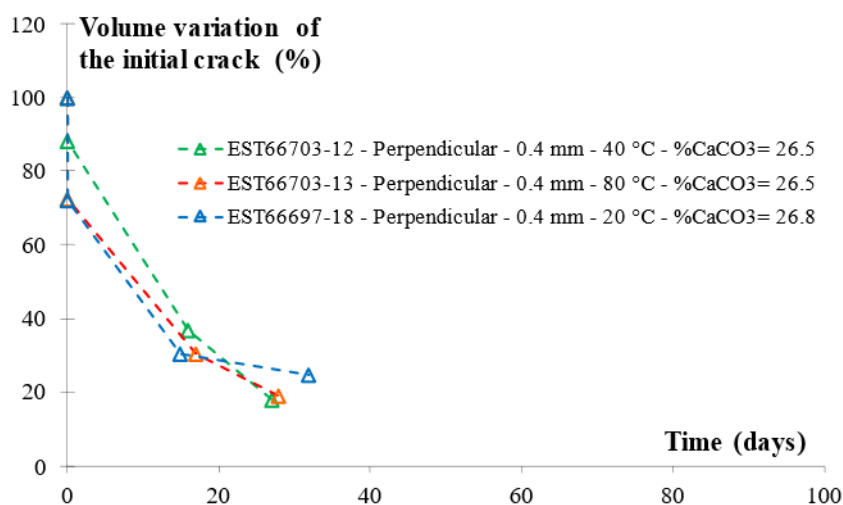


Figure 3-40 : Pourcentage de variation du volume de la fissure initiale (normalisé avec le volume après chargement hydrostatique) obtenu à partir des images 3D de tomographie à rayons X pendant les tests d'auto-colmatage à l'eau réalisés sur les échantillons parallèle EST66697-18, EST66703-13, et EST66703-13.

Tableau 3-10 : Synthèse de mesures effectuées pour l'étude de l'influence de la température sur l'orientation perpendiculaire.

Echantillon	Orientation	%CaCO ₃	Volume initial (mm ³)	Volume final (mm ³)	%Fissure	Perméabilité initiale (m ²)	Perméabilité finale (m ²)	Température (°C)
EST66697-18	⊥	26,8	76,04	18,82	25	1,61 x 10 ⁻¹⁷	1,59 x 10 ⁻¹⁸	20
EST66703-12	⊥	26,5	85,12	15,42	18	2,85 x 10 ⁻¹⁷	3,21 x 10 ⁻¹⁸	40
EST66703-13	⊥	26,5	85,09	16,23	19	1,09 x 10 ⁻¹⁶	4,13 x 10 ⁻¹⁸	80

3.6.5. Influence de l'injection du gaz sur le processus d'auto-colmatage

L'influence de l'injection du gaz sur le processus d'auto-colmatage a été étudiée en réalisant 2 essais d'auto-colmatage à température ambiante (un échantillon parallèle EST66418-5 avec %CaCO₃ = 25,4 et un échantillon perpendiculaire EST66723-11 avec %CaCO₃ = 20,8) avec injection d'eau et d'azote selon le protocole décrit précédemment. L'ouverture initiale de la fissure est la même pour les deux échantillons (0,4 mm). Les perméabilités à l'eau et au gaz de l'échantillon parallèle et perpendiculaire sont respectivement présentées dans les Figure 3-41 et 3-42. Il convient de souligner que les mesures de perméabilité au gaz sont dispersées. Il y a de nombreuses raisons techniques et physiques à cela : la difficulté d'obtenir un flux de gaz stable mesurable (l'intervalle de temps n'est pas le même pour toutes les mesures de perméabilité au gaz), la difficulté d'appliquer et de mesurer avec précision de faibles pressions de gaz (0,2 MPa ou 0,5 MPa) en amont de la cellule triaxiale, l'eau résiduelle à l'intérieur de la fissure qui peut perturber l'écoulement du gaz. À la fin de ces essais d'auto-colmatage, la perméabilité à l'eau est de 6×10⁻¹⁸ m² pour l'échantillon parallèle et de 6×10⁻¹⁹ m² pour l'échantillon perpendiculaire. Tandis que celle du gaz est d'environ 10⁻¹⁶ m² pour l'échantillon parallèle et d'environ 10⁻¹⁷ m² pour l'échantillon perpendiculaire.

Une comparaison de l'évolution de la perméabilité à l'eau au cours des essais d'auto-colmatage réalisés sur l'échantillon parallèle EST66418-5 (%CaCO₃ = 25,4) et sur l'échantillon perpendiculaire EST66723-11 (%CaCO₃ = 20,8) à l'essai d'auto-colmatage réalisé sur l'échantillon parallèle EST60766-3 (%CaCO₃ = 21) est présentée à la Figure 3-43. Seules les courbes en aval ont été représentées (la courbe en amont est presque la même) et elles ont été comparées à la courbe aval de l'échantillon EST60766-3. Il en résulte que la perméabilité à l'eau diminue assez rapidement au début comme pour l'essai réalisé sur l'échantillon EST60766-3, mais la diminution est plus lente et perturbée par la suite.

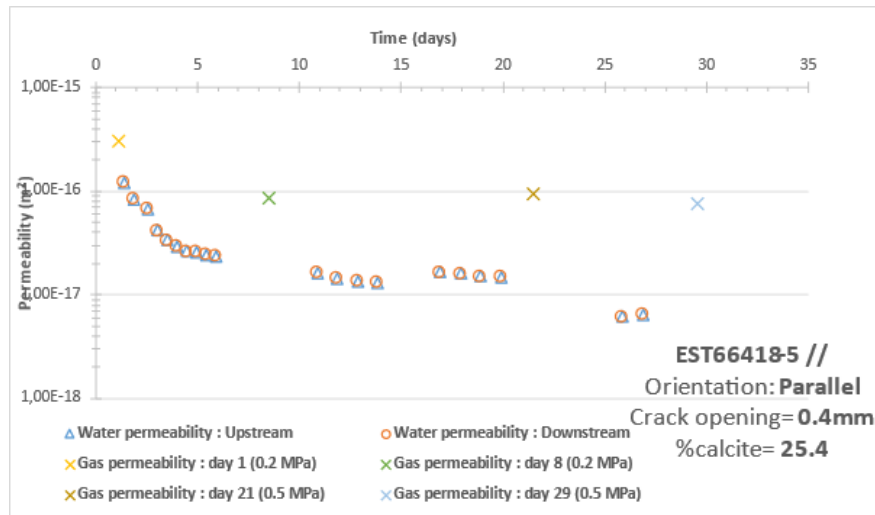


Figure 3-41 : Évolution de la perméabilité à l'eau des fissures au cours de l'essai d'auto-colmatage à l'eau et au gaz sur l'échantillon parallèle EST66418-5.

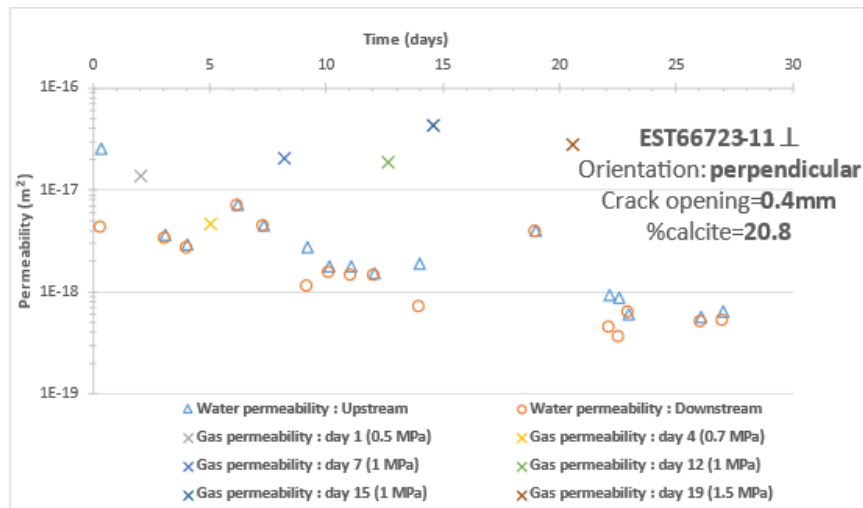


Figure 3-42 : Évolution de la perméabilité à l'eau des fissures lors de l'essai d'auto-colmatage à l'eau et au gaz sur l'échantillon perpendiculaire EST66723-11.

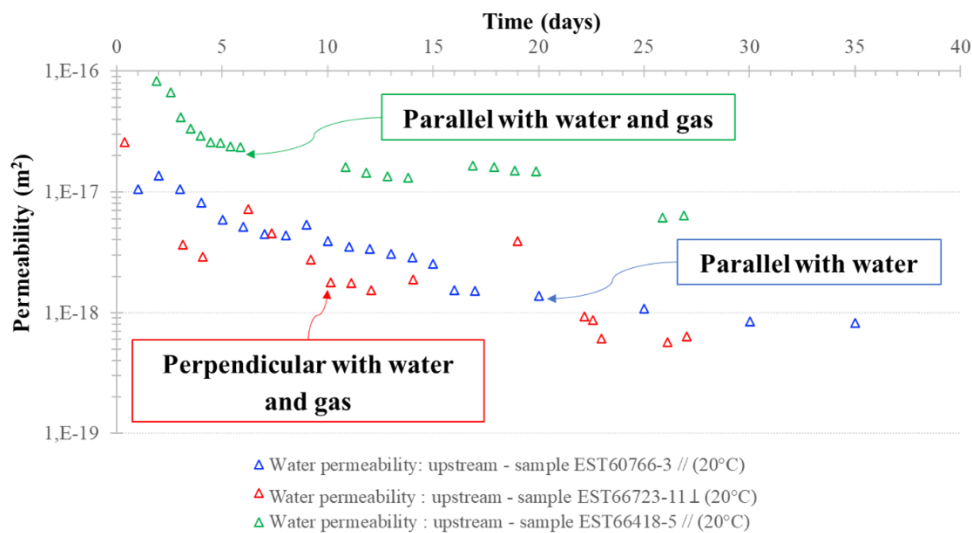


Figure 3-43 : Évolution de la perméabilité à l'eau des fissures lors des essais d'auto-colmatage sur les échantillons EST60766-3 (parallèle), EST63744-7 (parallèle) et EST63744-11 (perpendiculaire).

La Figure 3-44 présente la géométrie finale de la fracture obtenue à partir des données de la tomographie 3D aux rayons X sur l'échantillon EST66418-5 testé à 20 °C (ouverture initiale de 0,4 mm). Le volume de la fracture a chuté jusqu'à 3,3 mm³ après 39 jours d'essai d'auto-colmatage. Les Figure 3-45 et 3-46 présentent l'évolution de la géométrie de la fracture obtenue à partir des données de la tomographie 3D aux rayons X sur l'échantillon EST66723-11 testé à 20 °C (ouverture initiale de 0,4 mm). Avant la saturation en eau, le volume de la fracture était de 73,01 mm³. Après la saturation, il a chuté à environ 28,99 mm³, puis a continué de diminuer jusqu'à 18 mm³ après 27 jours d'essai d'auto-colmatage.

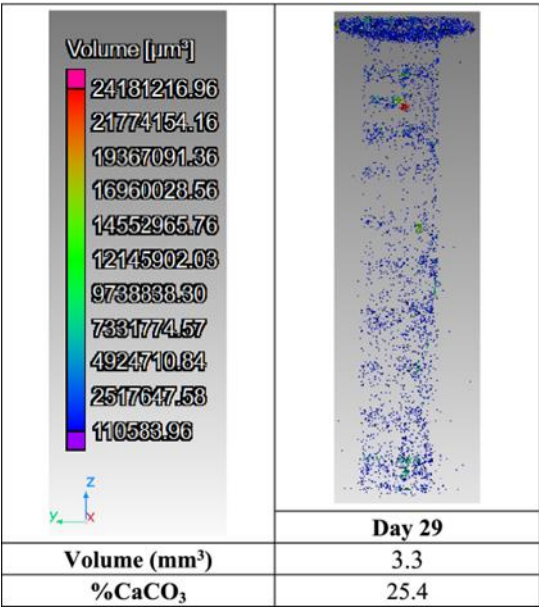


Figure 3-44 : Image de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon parallèle EST66418-5 montrant le volume de la fissure à la fin de l'essai d'auto-colmatage à l'eau et au gaz.

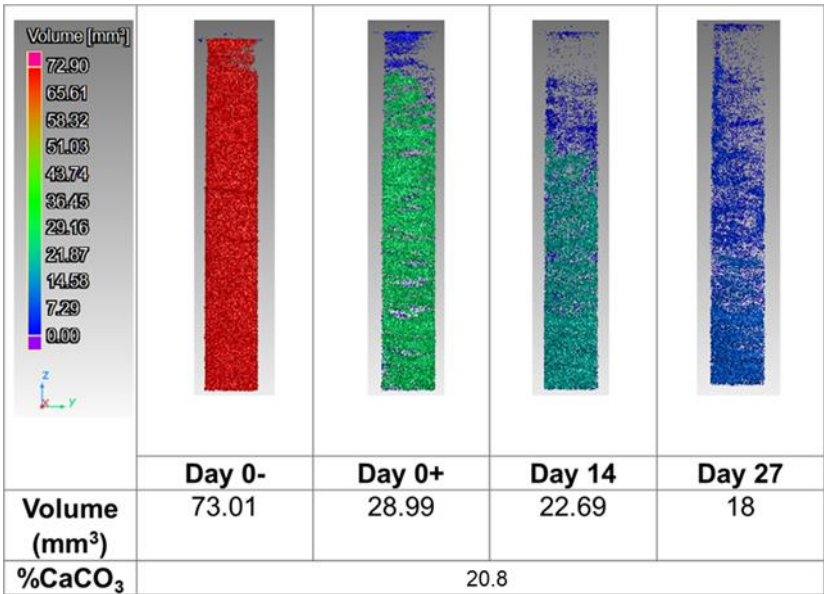


Figure 3-45 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST66723-11 montrant l'évolution du volume de la fissure dans le temps au cours de l'essai d'auto-colmatage à l'eau et au gaz (Jour 0- : après chargement hydrostatique ; Jour 0+ : après saturation de la fissure).

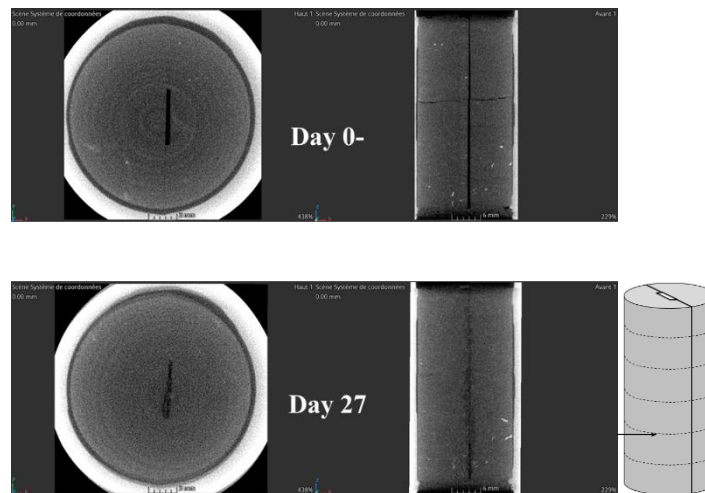


Figure 3-46 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST66723-11 montrant l'évolution d'une coupe transversale et longitudinale de la fissure avec le temps (ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) pendant l'essai d'auto-colmatage à l'eau et au gaz à 20°C (Jour 0- : après la charge hydrostatique).

3.7. Discussion

3.7.1. Influence de la teneur en calcite

Les résultats des différents tests d'auto-colmatage effectués sur l'argilite du COx semblent indiquer que plusieurs paramètres ont une influence sur le processus physico-chimique d'auto-colmatage (réduction de la perméabilité et fermeture de la fissure artificielle initiale). Le premier paramètre est la teneur en carbonate de calcium (calcite). Ce paramètre est à peu près anti-corrélé avec la teneur en argile. En effet, plus la teneur en carbonate est élevée, plus le processus d'auto-colmatage est lent. Et pour une teneur en carbonate très élevée, c'est-à-dire pour une teneur en argile très faible (échantillon EST59996-71, Figure 3-15), il n'y a pratiquement pas d'auto-colmatage. Ces constatations rejoignent les conclusions de l'étude menée par Di Donna *et al.* (2022) qui confirme que les unités argileuses présentent une réactivité supérieure à celles de transition, moins riches en argile. Ces processus sont décrits dans Auvray *et al.* (2015).

Ceci est très bien illustré dans la Figure 3-47 (en haut), qui représente le pourcentage de variation de volume de la fissure initiale (normalisé avec le volume après chargement hydrostatique) obtenu à partir d'images 3D de tomographie à rayons X pendant tous les essais d'auto-colmatage avec de l'eau, pour des orientations parallèles et perpendiculaires. Seul l'échantillon EST60018-71 n'est pas représenté sur cette Figure 3-47 car le colmatage très rapide a induit le bouchage du capillaire d'entrée et interrompu le processus d'auto-colmatage. En fait, quelle que soit l'orientation de l'échantillon (parallèle ou perpendiculaire) et la température d'essai (qui n'affecte pas de manière significative le processus d'auto-colmatage, comme indiqué précédemment), cette tendance est vérifiée. Le bas de la Figure 3-47 représente le pourcentage de variation de volume de la fissure initiale à la fin du test (même si la durée du test n'est pas la même pour tous les échantillons) en fonction de la teneur en calcite pour les deux orientations. Il montre que la capacité d'auto-colmatage est fortement corrélée à la teneur en calcite. Ce résultat est très important car il met en évidence l'importance de la minéralogie (c'est-à-dire la teneur en argile puis en carbonates) de la roche hôte argileuse pour permettre un bon scellement des fractures dans l'EDZ lors de la resaturation des structures souterraines pour le stockage des déchets radioactifs dans les roches argileuses, ce qui garantira la sécurité du site.

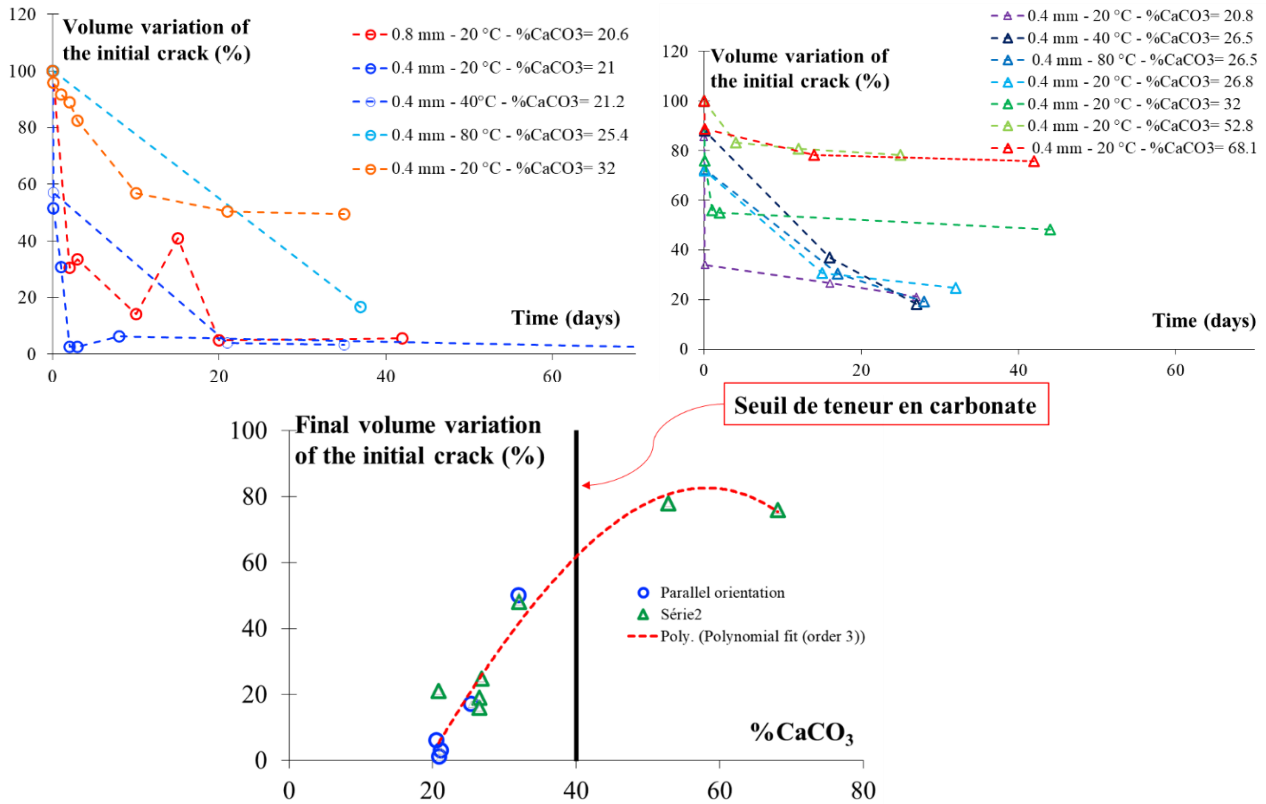


Figure 3-47 : En haut : pourcentage de variation du volume de la fissure initiale (normalisé avec le volume après chargement hydrostatique) obtenu à partir des images 3D de tomographie à rayons X pendant tous les tests d'auto-colmatage à l'eau, pour les orientations parallèles (à gauche) et perpendiculaires (à droite). En bas : pourcentage de variation du volume de la fissure initiale à la fin du test en fonction de la teneur en calcite pour les deux orientations.

Pour les échantillons les plus carbonatés EST59996-71 (%CaCO₃ = 68.1) et EST60007-71 (%CaCO₃ = 52.8), le volume de la fissure a à peine changé pendant les expériences d'auto-colmatage (Figure 3-15, 3-17 et 3-47) et il n'a pas été possible de mesurer la perméabilité à l'eau parce que la fissure est restée complètement ouverte, ce qui a empêché l'obtention d'un gradient de pression stable. A l'inverse, pour l'échantillon le plus argileux 60018-71 (%CaCO₃ = 5,3), le processus de colmatage a été très rapide, presque instantané en fait (Figure 3-19 et 3-47), ce qui a provoqué le colmatage du capillaire d'entrée et n'a pas permis de mesurer la perméabilité. En ce qui concerne les échantillons à teneur intermédiaire en carbonate, quels que soient l'ouverture initiale de la fissure, l'orientation et la température, il a été possible de mesurer la perméabilité à l'eau (Figure 3-9, 3-21, 3-27 et 3-33) au cours des expériences d'auto-colmatage. Ces mesures de perméabilité, ainsi que l'analyse de l'évolution du volume des fissures (Figure 3-10 à 3-13 ; 3-15 à 3-20 ; 3-22 à 3-25 ; 3-28 à 3-31 ; 3-34 à 3-39 ; 3-44 à 3-47), confortent les travaux de Giot et al. (2019) où il est indiqué que le seuil concernant la teneur en carbonate pour observer l'auto-colmatage se situerait autour de 40%. En dessous de ce seuil, le processus d'auto-colmatage est efficace, mais quasi inexistant lorsque la teneur en carbonate est supérieure. La valeur de ce seuil est cohérente avec l'évolution du pourcentage de variation de volume de la fissure initiale à la fin du test en fonction de la teneur en calcite, qui est représentée sur la Figure 3-47(bas). Ceci s'aligne avec les travaux de Zhang et Talandier (2023) où il ressort que le colmatage des fractures est principalement déterminé par la capacité de gonflement de l'argilite, qui est elle-même déterminée par sa teneur en argile. Plus la teneur en argile est élevée, plus elle peut absorber d'eau, ce qui entraîne un gonflement et un effondrement plus important des parois des fractures et donc un colmatage plus efficace des fractures.

3.7.2. Influence de l'orientation de l'échantillon et de l'ouverture de la fissure

Les images 3D par tomographie à rayons X (Figure 3-10 à 3-13) et les mesures de perméabilité (Figure 3-9) obtenues sur les échantillons EST63744-11 (perpendiculaire, %CaCO₃ = 32) et EST63744-7 (parallèle, %CaCO₃ = 32) n'ont pas permis de mettre en évidence l'influence de l'anisotropie sur le processus d'auto-colmatage comme suggéré par Auvray et al. (2015). Ces deux carottes ont été prélevées dans le même forage EST63744 (mêmes paramètres minéralogiques et pétrophysiques), avec la même ouverture de fissure initiale (400 µm). Tout d'abord, la fermeture mécanique initiale due au chargement hydrostatique initial avec une pression de confinement de 4 MPa induit la fermeture de la fissure artificielle. La réduction des fissures et de la perméabilité par la présence ou l'augmentation de la pression de confinement a été montré dans les travaux de Wang et al. (2024), Zhang et Rothfuchs (2004) et Davy et al. (2007).

Ensuite, concernant le processus d'auto-colmatage, Auvray et al. (2015) et Di Donna et al. (2022) ont suggéré qu'il est plus efficace pour une orientation parallèle que pour une orientation perpendiculaire, même si leur affirmation n'est pas évidente au vu des courbes expérimentales présentées dans leur article. Giot et al. (2019) ont proposé que la première phase du processus d'auto-colmatage est due au gonflement cristallin des minéraux argileux gonflants (smectites), par adsorption d'eau dans les feuillets d'argile puisque les échantillons sont partiellement saturés (en fait un peu désaturés dans notre cas), avant le début de l'expérience d'auto-colmatage (c'est-à-dire pendant l'étape initiale de saturation des fissures). Ensuite, pendant l'essai d'auto-colmatage, suit un gonflement osmotique des minéraux argileux, par absorption de l'eau entre les particules d'argile à une saturation en eau plus élevée. La troisième et dernière phase est la formation des premiers bouchons d'argile. Les échantillons orientés parallèlement au plan de litage voient l'eau s'infiltrer plus facilement entre les feuillets, ce qui déclenche plus rapidement le processus d'auto-colmatage. Durant ces phases rapides, on observe une diminution rapide de la perméabilité à l'eau et du volume de la fissure. Ensuite, on observe une diminution modérée et progressive de la perméabilité à l'eau et de l'ouverture de la fissure en raison du gonflement progressif des minéraux d'argile (smectites) dans l'ensemble de l'échantillon, de la fissure centrale artificielle aux bords externes de l'échantillon, ainsi que de l'expansion et de la densification des bouchons d'argile.

A partir de là, on peut supposer pour les échantillons parallèles que les minéraux argileux peuvent gonfler librement latéralement vers l'intérieur de la fracture sans aucune contrainte. En revanche, lorsque l'axe de l'échantillon est perpendiculaire au plan de litage, on peut supposer que la contraction axiale (due à la pression de confinement de 4 MPa dans notre cas) empêche un gonflement libre des surfaces des minéraux argileux dans la direction axiale et que le gonflement dans la direction latérale (c'est-à-dire perpendiculairement aux surfaces des fissures) n'est probablement pas très important. Pour tous les tests d'auto-colmatage réalisés avec une injection d'eau à température ambiante (20 °C), la même évolution de la perméabilité à l'eau et du volume de la fissure a été globalement observée et les mécanismes physiques décrits ci-dessus pourraient expliquer cette évolution. Cependant, l'influence de l'orientation de l'échantillon n'est pas évidente dans nos résultats expérimentaux et il semble que le processus d'auto-colmatage soit aussi efficace pour des orientations parallèles que perpendiculaires. Les mécanismes de gonflement (cristallin et osmotique) sont certainement plus efficaces dans les échantillons parallèles que dans les échantillons perpendiculaires, mais les phases finales de formation, d'expansion et de densification des bouchons, qui dépendent peut-être moins de l'orientation de l'échantillon, sont peut-être beaucoup plus efficaces pour sceller les fissures. Cela pourrait expliquer pourquoi, finalement, il n'y a pas d'influence significative de l'orientation de l'échantillon dans nos expériences d'auto-colmatage. Il est évident que cette conclusion mériterait d'être vérifiée par des tests d'auto-colmatage supplémentaires.

Les images 3D obtenues par tomographie à rayons X (Figure 3-22 à 3-25) et les mesures de perméabilité (Figure 3-21) obtenues sur les échantillons EST60766-3 (parallèle, %CaCO₃ = 21, ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) et EST62690-2 (parallèle, %CaCO₃ = 20,6, ouverture initiale de la fissure = 0,8 mm) apportent la preuve de l'influence de l'ouverture initiale de la fissure sur le processus d'auto-colmatage. Ces expériences ont montré que l'échantillon avec une ouverture de fissure de 400 µm s'auto-colmatait plus rapidement que l'échantillon avec une ouverture de fissure plus grande (800 µm), ce qui est également illustré dans la Figure 3-47. Ces observations corroborent les conclusions de l'étude menée par Di Donna *et al.* (2022) qui soutient que les petites fractures se colmatent plus rapidement que les plus grandes. Par contre, à la fin des deux expériences, la perméabilité est presque la même ($\sim 10^{-18}$ m²). Même si ce résultat doit être vérifié par d'autres expériences similaires, il est évident qu'il faut plus de temps pour remplir un plus grand volume, alors que la vitesse de gonflement des minéraux argileux gonflants est probablement la même dans les deux cas. Comme l'expliquent Giot *et al.* (2019), l'eau doit s'infiltrer dans les feuilles pour les faire gonfler. Ainsi, lorsque les deux lèvres de la fissure sont plus proches, la fissure se referme plus rapidement et donc la valeur de la perméabilité à l'eau et l'ouverture de la fissure se réduisent plus vite. De plus, l'évolution de la perméabilité de l'échantillon EST62690-2 avec une ouverture de fissure initiale de 0,8 mm (Figure 3-21) présente une tendance non monotone. Cela signifie que l'auto-colmatage des fractures n'est pas un mécanisme continu et linéaire si l'ouverture de la fissure est large. En effet, dans ce cas (ouverture large), une partie du matériau de colmatage peut être arrachée par l'écoulement de l'eau, ce qui peut occasionnellement augmenter la perméabilité.

3.7.3. Influence de la température

L'essai d'auto-colmatage réalisé avec injection d'eau à une température élevée (80 °C) sur l'échantillon EST66418-10 (parallèle, %CaCO₃ = 25,4, ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) a montré que juste après l'élévation de température, une augmentation rapide de la perméabilité intrinsèque à l'eau (Figure 3-27). Il convient de souligner que la viscosité de l'eau a été corrigée dans le calcul de la perméabilité intrinsèque pour tenir compte de ce changement de température (diminution de la viscosité de l'eau avec la température et donc augmentation de la conductivité hydraulique). Cette augmentation rapide de la perméabilité intrinsèque peut s'expliquer par la surpression d'eau à l'intérieur de la fracture, qui écarte les lèvres de la fracture et augmente ainsi la perméabilité à l'eau de la fracture. En effet, le coefficient de dilatation thermique de l'eau ($2,6 \times 10^{-4}$ (°C)⁻¹ à 25 °C et $5,8 \times 10^{-4}$ (°C)⁻¹ à 80 °C) est d'un ordre de grandeur supérieur à celui des grains solides dans l'argilite du COx ($2,6 \times 10^{-5}$ (°C)⁻¹ à 25 °C et 11×10^{-5} (°C)⁻¹ à 80 °C) (Mohajerani, 2011). Cette surpression de l'eau interstitielle à l'intérieur de la fracture (induite par cette expansion thermique différentielle) se dissipe par la suite dès que les conditions drainées sont rétablies. Par conséquent, l'augmentation rapide de la perméabilité de la fracture en début d'expérience est transitoire. Par la suite, l'évolution de la perméabilité (Figure 3-27) se comporte comme pour les autres essais, c'est-à-dire qu'elle diminue d'abord rapidement, puis lentement et progressivement. Par conséquent et pour résumer, l'augmentation de température provoque donc un léger effet de retard sur la réduction de la perméabilité en début d'expérience en raison de la surpression transitoire de l'eau dans la fracture. L'essai d'auto-colmatage réalisé avec injection d'eau à 40 °C sur l'échantillon EST66727-05 (parallèle, %CaCO₃ = 21,2, ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) n'a pas montré une augmentation rapide similaire (et transitoire) de la perméabilité à l'eau juste après l'augmentation de la température (Figure 3-27), probablement parce que la température n'était pas très élevée (seulement 40 °C) dans ce cas. L'évolution de la perméabilité s'est comportée comme pour les autres essais, du début à la fin, c'est-à-dire qu'elle a d'abord diminué rapidement, puis lentement et progressivement (Figure 3-27).

On remarque un comportement similaire de la perméabilité à l'eau lors de l'essai d'auto-colmatage effectué avec injection d'eau à une température élevée (80 °C) sur l'échantillon EST66723-13 (perpendiculaire, %CaCO₃ = 26,5, ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) (Figure 3-33) par rapport à celui réalisé à une température élevée (80 °C) sur l'échantillon EST66418-10 (parallèle, %CaCO₃ = 25,4, ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm). L'essai d'auto-colmatage effectué avec injection d'eau à une température élevée (80 °C) sur l'échantillon EST66723-13 a révélé juste après l'élévation de température une augmentation rapide de la perméabilité intrinsèque à l'eau, suivie d'une diminution d'abord rapide, puis lente et progressive, similaire à celle observée pour les autres essais d'auto-colmatage. L'augmentation rapide de la perméabilité intrinsèque en début d'essai peut s'expliquer par la surpression d'eau à l'intérieur de la fracture, qui écarte les lèvres de la fracture et augmente ainsi la perméabilité à l'eau de la fracture. Cette surpression de l'eau interstitielle à l'intérieur de la fracture, induite par cette expansion thermique différentielle, se dissipe par la suite dès que les conditions drainées sont rétablies. Par conséquent, l'augmentation rapide de la perméabilité de la fracture en début d'expérience est transitoire. Pour résumer, l'augmentation de température provoque donc un léger effet de retard sur la réduction de la perméabilité en début d'expérience en raison de la surpression transitoire de l'eau dans la fracture.

L'essai d'auto-colmatage réalisé avec injection d'eau à 40 °C sur l'échantillon EST66723-12 (perpendiculaire, %CaCO₃ = 26,5, ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) n'a pas montré une augmentation rapide de la perméabilité à l'eau juste après l'augmentation de la température (Figure 3-33). L'évolution de la perméabilité s'est comportée comme pour l'essai réalisé à température ambiante (20°C) sur l'échantillon EST66418-10 (parallèle, %CaCO₃ = 25,4, ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) (Figure 3-33). Une augmentation rapide de la perméabilité à l'eau juste après l'augmentation de la température n'a pas été observée, peut-être parce que la température n'était pas très élevée (seulement 40 °C) dans ce cas.

Un léger décalage dans la vitesse de fermeture de la fracture a été observé, comme le montrent les Figure 3-32 et 3-40. La Figure 3-47 illustre également ce phénomène en montrant que le volume de la fissure diminue plus lentement pour l'échantillon EST66418-10 (80 °C) que pour les échantillons EST66727-05 (40°C) et EST60766-03 (20°C). Cette variation de vitesse de réduction des fissures pourrait être liée à l'incertitude dans la méthode de calcul des volumes à partir des données voxel ainsi qu'à l'hétérogénéité des propriétés du matériau (les teneurs diffèrent entre les échantillons). Bien que cet effet relatif de la température sur l'auto-colmatage (fermeture des fissures et réduction de la perméabilité à l'eau) demande à être confirmé par d'autres séries d'essais à haute température, aucune influence significative n'a été clairement identifiée jusqu'à présent.

3.7.1. Influence de l'injection du gaz

Les essais d'auto-colmatage mixte, effectués avec de l'eau et du gaz (azote) sur l'échantillon EST66418-5 (orientation parallèle, %CaCO₃ = 25,4, ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) et l'échantillon EST66723-11 (orientation perpendiculaire, %CaCO₃ = 20,8, ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm), ont révélé l'impact significatif de l'injection d'un gaz inerte sur le processus d'auto-colmatage. L'introduction de gaz retarde la réduction de la perméabilité à l'eau, comme illustré dans les Figure 3-41 et 3-42, même lorsque la fissure est pratiquement refermée à la fin de l'expérience après 29 jours pour l'échantillon parallèle EST66418-5 (Figure 3-44) et après 27 jours pour l'échantillon perpendiculaire EST66723-11 (Figure 3-45). Cette observation pourrait être attribuée à la désaturation induite par l'injection de gaz, entraînant ainsi un ralentissement du processus d'auto-colmatage. Malgré la perturbation du processus d'auto-colmatage, de manière globale, on observe une réduction rapide de la perméabilité au début suivie

d'une réduction modérée de la perméabilité à l'eau des échantillons quelle que soit l'orientation (parallèle et perpendiculaire). Donc, malgré ce retard, le processus d'auto-colmatage s'est encore avéré efficace, montrant une réduction significative de la perméabilité et du volume de la fracture.

En observant l'évolution de la perméabilité au gaz de l'échantillon parallèle EST66418-5 (orientation parallèle, %CaCO₃ = 25,4, ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm), on constate que la perméabilité au gaz suit la tendance de la perméabilité à l'eau. La perméabilité au gaz diminue de $3,04 \times 10^{-16}$ à $7,47 \times 10^{-17}$ m². Sur l'échantillon perpendiculaire EST66723-11 (orientation perpendiculaire, %CaCO₃ = 20,8, ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm), on observe également une corrélation entre l'évolution de la perméabilité à l'eau et celle de la perméabilité au gaz. Lorsque la perméabilité à l'eau diminue, celle du gaz tend à diminuer et lorsque celle de l'eau augmente due aux perturbations induites par l'injection du gaz, on observe une augmentation de la perméabilité au gaz. Quelle que soit l'orientation, l'évolution de la perméabilité du gaz suit celle de la perméabilité à l'eau et est supérieure à cette dernière. Cette disparité entre la perméabilité à l'eau et au gaz a également été remarquée dans l'étude menée par Davy *et al.* (2007). Leurs travaux ont révélé des résultats très divergents lors des tests de perméabilité à l'eau (pulse test). Les valeurs mesurées de la perméabilité à l'eau variaient de 2 à 8 ordres de grandeur inférieurs à celles des tests de perméabilité au gaz (régime permanent). Ceci s'explique par le fait que le liquide est contraint de s'écouler dans les pores les plus étroits, induisant ainsi une perméabilité relative généralement inférieure à celle du gaz. Il est important de noter que les mesures de perméabilité à l'eau se font en condition saturée (on attend que la fracture soit resaturée avant de faire le calcul du débit d'eau) alors que les mesures de perméabilité au gaz se font en condition partiellement saturée (la fracture est partiellement désaturée par la circulation de gaz) dans un contexte d'écoulement multiphasique. Dans ce dernier cas, on est en présence de 2 fluides en compétition, l'eau et le gaz, et la perméabilité mesurée au gaz doit donc être considérée comme une perméabilité relative qui dépendent du degré de saturation de l'échantillon (cf. Eq. 2.13, paragraphe 2.1). La mesure de la perméabilité au gaz a été réalisée sans considérer l'effet Klinkenberg, ce qui a abouti à une estimation de la perméabilité apparente. Étant donné que les essais ont été conduits sous des pressions de gaz relativement faibles, l'influence de l'effet Klinkenberg ne peut être ignorée dans ce contexte. Il est important de noter que la perméabilité apparente diffère de la perméabilité intrinsèque dans cette situation. Ceci explique la différence entre la perméabilité à l'eau et celle au gaz.

Durant l'essai, on a également observé que la pression de gaz nécessaire pour avoir un régime permanent et pouvoir mesurer la perméabilité au gaz évoluait avec le temps peu importe l'orientation (perpendiculaire ou parallèle). Plus le niveau de colmatage augmente plus la pression de gaz nécessaire pour mesurer la perméabilité augmente. L'évolution de la pression de gaz nécessaire pour mesurer la perméabilité au gaz et l'évolution du colmatage de la fissure de l'échantillon parallèle EST66418-5 (orientation parallèle, %CaCO₃ = 25,4, ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm), et perpendiculaire EST66723-11 (orientation perpendiculaire, %CaCO₃ = 20,8, ouverture initiale de la fissure = 0,4 mm) sont représentés respectivement sur la Figure 3-48 et la Figure 3-49. Sur ces figures nous pouvons remarquer que l'évolution du niveau de colmatage est corrélée à la pression du gaz nécessaire pour mesurer la perméabilité au gaz. Ceci vient du fait que plus les échantillons se colmatent plus la fissure artificielle se ferme et donc, il nous faut une pression de gaz plus grande pour être au-dessus de la pression de percée du matériau. Le chemin préférentiel de circulation étant celui de la fissure artificielle (ouverture plus grande que la taille des pores), sa réduction influe sur la pression de gaz nécessaire pour traverser l'échantillon.

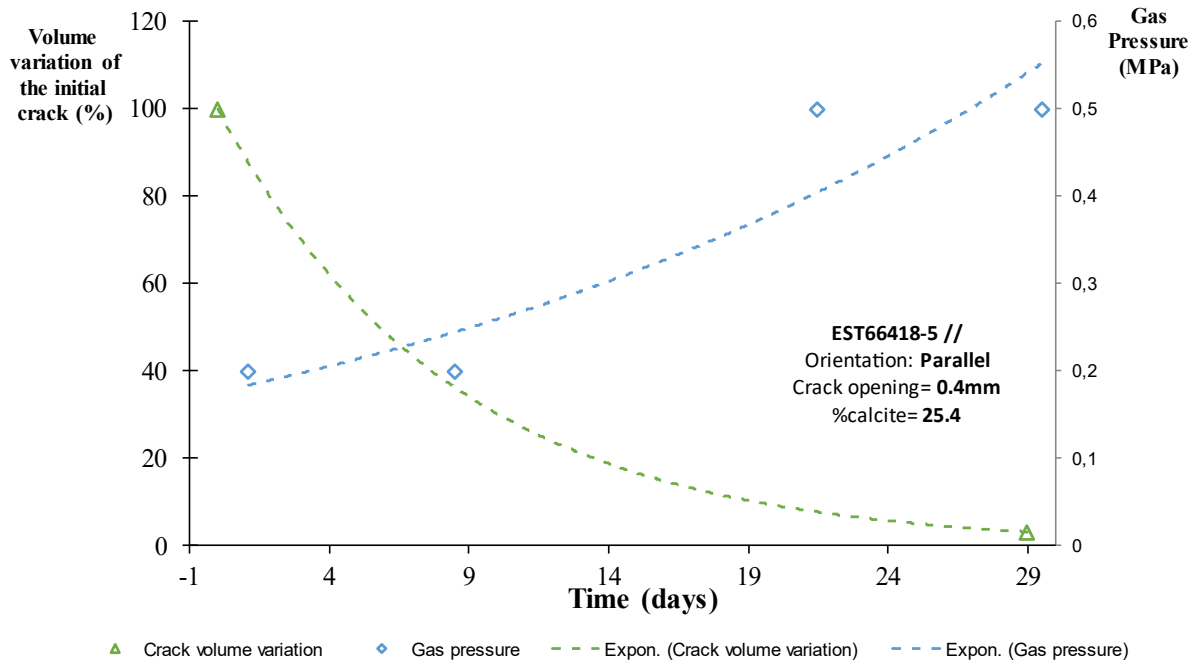


Figure 3-48 : Pourcentage de variation du volume de la fissure initiale (normalisé avec le volume après chargement hydrostatique) obtenu à partir des images 3D de tomographie à rayons X pendant d'auto-colmatage à l'eau et au gaz , pour l'orientations parallèle (EST66418-5) ; et la pression de gaz nécessaire pour la mesure de perméabilité au gaz.

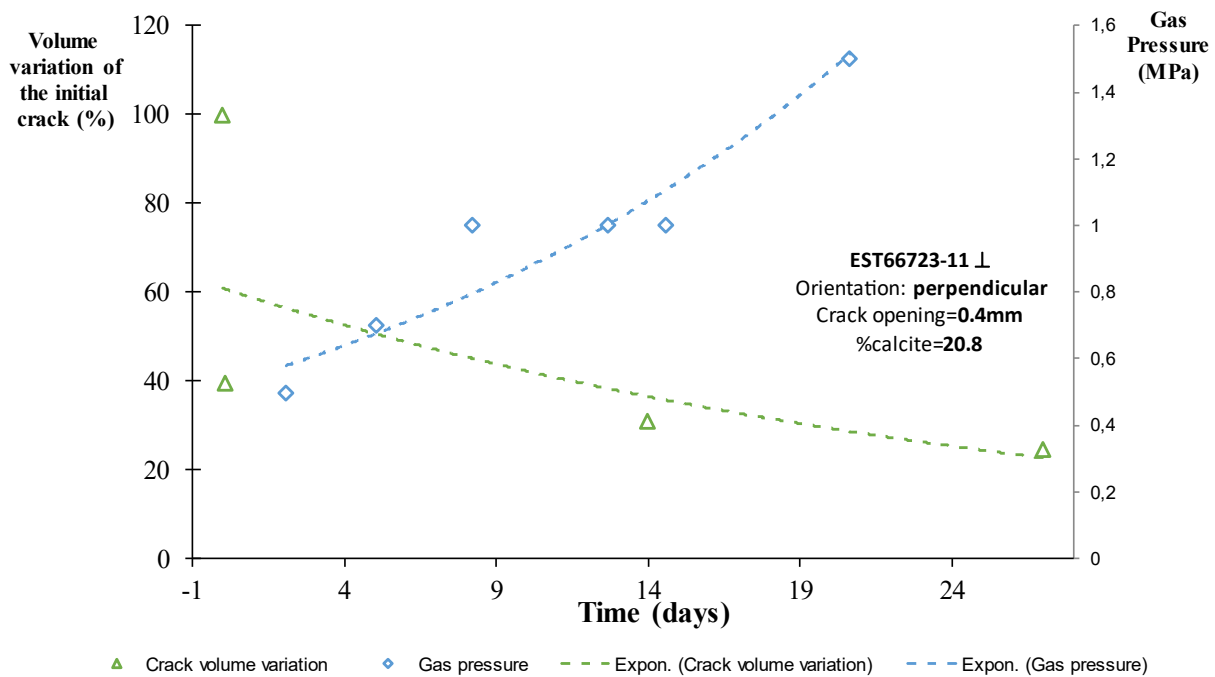


Figure 3-49 : Pourcentage de variation du volume de la fissure initiale (normalisé avec le volume après chargement hydrostatique) obtenu à partir des images 3D de tomographie à rayons X pendant d'auto-colmatage à l'eau et au gaz , pour l'orientations perpendiculaire (EST66723-11) ; et la pression de gaz nécessaire pour la mesure de perméabilité au gaz.

Conclusion

Ce chapitre a examiné l'impact de divers facteurs sur le processus d'auto-colmatage dans l'argilite du Callovo-Oxfordien. En utilisant une cellule triaxiale transparente aux rayons X et un dispositif expérimental avancé, nous avons pu observer de près l'évolution du volume des fissures artificielles grâce

à la tomographie 3D aux rayons X, ainsi que la perméabilité à l'eau et au gaz sur des carottes cylindriques de l'argilite du COx. Des essais d'auto-colmatage avec injection d'eau ont été réalisés sous différentes conditions, en modifiant la température, l'orientation des échantillons, la teneur en calcite et l'ouverture initiale des fissures. Nous avons également effectué des expériences d'auto-colmatage mixtes en injectant successivement de l'eau et du gaz. Le Tableau 3-11 récapitule les mesures effectuées dans ce chapitre.

Tableau 3-11 : Synthèse des mesures effectuées.

Echantillon	Orientation	%CaCO ₃	Volume initial (mm ³)	Volume final (mm ³)	%Fissure	Perméabilité initiale (m ²)	Perméabilité finale (m ²)	Température (°C)
EST60018-71	⊥	5,3	60	40	67	X	X	20
EST62690-02 (ouverture = 0,8 mm)	//	20,6	191	10,6	6	2,97 x 10 ⁻¹⁵	4,4 x 10 ⁻¹⁹	20
EST60766-03	//	21	85,6	1	1	1,06 x 10 ⁻¹⁷	6,54 x 10 ⁻¹⁹	20
EST66697-18	⊥	26,8	76,04	18,82	25	1,61 x 10 ⁻¹⁷	1,59 x 10 ⁻¹⁸	20
EST63744-7	//	32	67,7	33,5	50	3,42 x 10 ⁻¹⁶	2,04 x 10 ⁻¹⁷	20
EST63744-11	⊥	32	126,2	60,8	48	4,12 x 10 ⁻¹⁷	1,07 x 10 ⁻¹⁸	20
EST60007-71	⊥	52,8	103,6	81	78	X	X	20
EST59996-71	⊥	68,1	110,8	84	67	X	X	20
EST66727-05	//	21,2	69,28	2,27	3	6,27 x 10 ⁻¹⁸	9,65 x 10 ⁻¹⁹	40
EST66703-12	⊥	26,5	85,12	15,42	18	2,85 x 10 ⁻¹⁷	3,21 x 10 ⁻¹⁸	40
EST66418-010	//	25,4	60	10	17	1,36 x 10 ⁻¹⁷	1,56 x 10 ⁻¹⁸	80
EST66703-13	⊥	26,5	85,09	16,23	19	1,09 x 10 ⁻¹⁶	4,13 x 10 ⁻¹⁸	80
EST66723-11	⊥	20,8	73,01	18	21	2,57 x 10 ⁻¹⁷	6,33 x 10 ⁻¹⁹	20
EST66418-05	//	25,4	X	3,3	X	1,20 x 10 ⁻¹⁶	6,35 x 10 ⁻¹⁸	20

Globalement, on retient tout d'abord de cette étude l'influence importante de la composition minéralogique de l'argilite du COx sur le processus d'auto-colmatage, essentiellement la teneur en calcite. Plus la teneur en carbonate de calcium est élevée (et donc plus la teneur en argile est faible), moins l'auto-colmatage est efficace, quelle que soit l'orientation de l'échantillon (parallèle ou perpendiculaire). Pour obtenir un colmatage efficace, il est nécessaire que la teneur en carbonate de calcium soit inférieure à 40 %. Il faut également noter que les feuillets d'argile orientés parallèlement aux surfaces initiales des fissures artificielles, et donc parallèlement à l'axe de la carotte cylindrique et à la direction de l'écoulement de l'eau, favorisent probablement un gonflement plus rapide des surfaces des fissures. Cependant, l'influence de

l'orientation de l'échantillon n'est pas évidente dans nos expériences et il semble que le processus d'auto-colmatage soit aussi efficace pour les orientations parallèles que perpendiculaires.

L'ouverture initiale de la fissure artificielle influence la cinétique du processus d'auto-colmatage. Il est plus rapide pour une ouverture de fissure initiale de 400 μm que de 800 μm . La température ne semble pas exercer d'influence notable sur le processus d'auto-colmatage, quelle que soit l'orientation, à l'exception d'un léger retard observé sur la perméabilité intrinsèque au début des essais menés à 80°C (suppression interstitielle). Enfin, l'injection de gaz (azote) a un impact sur le processus d'auto-colmatage. L'introduction de gaz ralentit la réduction de la perméabilité à l'eau quelle que soit l'orientation de la fissure (parallèle ou perpendiculaire) par rapport au plan de litage. Cette observation pourrait être attribuée à la désaturation induite par l'injection de gaz, entraînant ainsi un ralentissement du processus d'auto-colmatage.

D'une manière générale, le processus d'auto-colmatage est rapide au début du test puis se stabilise après un mois. Grâce à l'auto-colmatage, on observe une fermeture des fissures et la perméabilité à l'eau des échantillons d'argilite du COx est partiellement restaurée ($\sim 10^{-18}$ - 10^{-19} m^2) par rapport à la perméabilité initiale de l'argilite saine (c'est-à-dire sans fracture) ($\sim 10^{-20}$ - 10^{-21} m^2).

Dans toutes nos expériences, indépendamment des conditions expérimentales, l'auto-colmatage est toujours un mécanisme efficace si la teneur en argile est suffisamment élevée. Ces premiers résultats sont très prometteurs et donnent confiance en l'impact positif du processus d'auto-colmatage sur la restauration des propriétés mécaniques et hydrauliques (c'est-à-dire de scellement) initiales de la roche hôte argileuse d'autant que la durée de nos expériences est beaucoup plus courte que l'échelle de temps in situ. Ce mécanisme physico-chimique permettra un bon scellement des fractures dans l'EDZ pendant la resaturation des structures souterraines pour le stockage des déchets radioactifs dans les roches argileuses, ce qui garantira la sécurité du site.

CHAPITRE 4. : COMPRESSION TRIAXIALE AVEC INJECTION DE GAZ

Introduction

Les chapitres I et II, ont présenté le stockage des déchets radioactifs dans le concept de stockage profond, qui entraîne une production de gaz. Cette élévation de pression du gaz pourrait affecter l'environnement autour des colis par convection ou diffusion. Il est donc important de comprendre l'effet de cette montée en pression du gaz sur la roche hôte afin de garantir la faisabilité du projet.

Dans ce chapitre, l'objectif est d'étudier l'incidence de l'orientation (parallèle et perpendiculaire au litage) et des ouvertures/fissures sur la circulation du gaz à travers la roche hôte. Pour atteindre cet objectif, nous avons réalisé des essais de compression triaxiale sur l'argilite du COx.

Tout d'abord, des essais de compression triaxiale avec injection de gaz ont été menés sur des échantillons présentant différents états hydriques initiaux, chacun étant équipé de jauges de déformation. Par la suite, les mêmes essais ont été réalisés sans jauges de déformation, mais dans un nanotomographe, permettant ainsi de réaliser des scans 3D aux rayons X durant l'essai. Ces expérimentations ont été effectuées en fonction de deux orientations des échantillons (parallèle et perpendiculaire à la stratification), en utilisant de l'azote comme gaz inerte. La perméabilité au gaz a été mesurée en continu au cours des deux essais.

Cette approche expérimentale permettra de mieux appréhender le comportement du gaz au sein de la roche hôte en fonction de son orientation et des caractéristiques des fissures. Ces résultats contribueront à une meilleure compréhension de l'interaction entre le gaz et la roche dans le contexte du stockage profond.

Ce chapitre, divisé en deux parties, présentera d'abord les échantillons utilisés et leur préparation, la description du dispositif expérimental, les protocoles mis en place, ainsi que de la méthode choisie pour le traitement des données des essais. Enfin, la seconde partie sera consacrée à l'analyse et à la discussion des résultats obtenus.

4.1. Préparation des échantillons

Les essais de compression triaxiale avec injection de gaz, ont été réalisés sur des échantillons cylindriques (Figure 4-1) de 20 mm de diamètre et de 40 mm de hauteur, prélevés dans les forages de l'Andra, tout comme pour les essais d'auto-colmatage. Afin de maintenir leur saturation en eau au-dessus de 90 % pour respecter l'état de saturation des échantillons avant les essais mécaniques (Conil *et al.*, 2018), les échantillons ont été soigneusement enveloppés dans une couche de Parafilm et placés sous cloche.

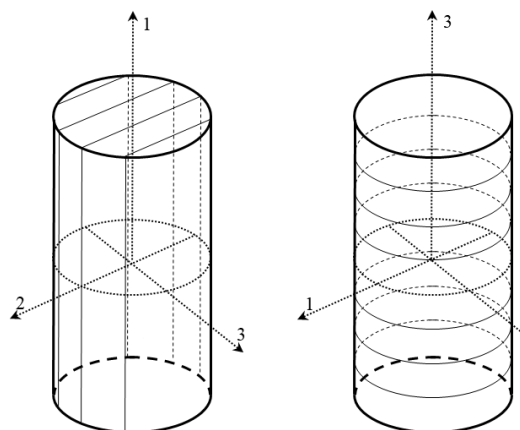


Figure 4-1 : Echantillon cylindrique ($\varnothing = 20$ mm ; $h = 40$ mm) d'argilite du COx.

Ces échantillons seront soumis à différents états hydriques initiaux modifiés artificiellement pour examiner l'influence de l'état hydrique initial sur les essais de compression triaxiale avec injection de gaz.

En raison de la présence de plans de litage, l'argilite du COx présente une anisotropie structurale (isotropie transverse). Le comportement mécanique dépend donc de la direction de la charge par rapport au plan de litage. Deux orientations de l'axe cylindrique de l'échantillon ont donc été considérées, à savoir perpendiculaire et parallèle au plan de litage. Pendant les essais mécaniques, les déformations des échantillons (ε_{11} , ε_{22} , et ε_{33}) sont mesurées à l'aide de jauges de déformation. Considérant que l'argilite du COx est un matériau isotrope transversalement, le cadre de référence (1, 2, 3) est défini dans la Figure 4-2 pour des échantillons cylindriques, (1, 2) étant le plan de litage. Pour chaque déformation principale, deux jauges de contrainte, se faisant face sur l'échantillon cylindrique, sont collées (avec une résine époxy) sur la surface de l'échantillon à mi-hauteur. Pour les échantillons carottés perpendiculairement au plan de litage ($\theta = 0^\circ$), une déformation axiale et une déformation latérale sont mesurées, tandis qu'une déformation axiale et deux déformations latérales sont mesurées pour les échantillons carottés parallèlement au plan de litage ($\theta = 90^\circ$), comme illustré dans la Figure 4-2. La présence de davantage de jauges latérales sur les échantillons parallèles s'explique par le fait que la déformation latérale dans le plan de stratification différera de celle observée dans la direction perpendiculaire à ce plan. La convention des contraintes et déformations positives pour les compressions sera utilisée.

En ce qui concerne les essais sous nanotomographie, les éprouvettes ne seront pas équipées de jauges de déformation car elles ne sont pas transparentes aux rayons X.

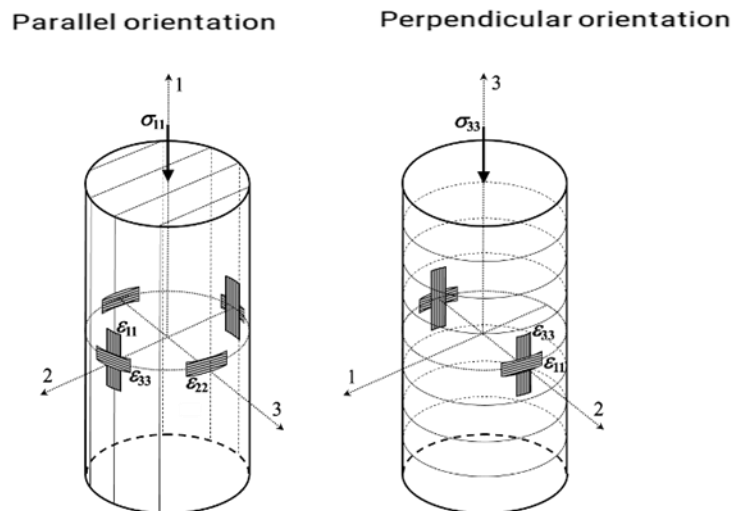
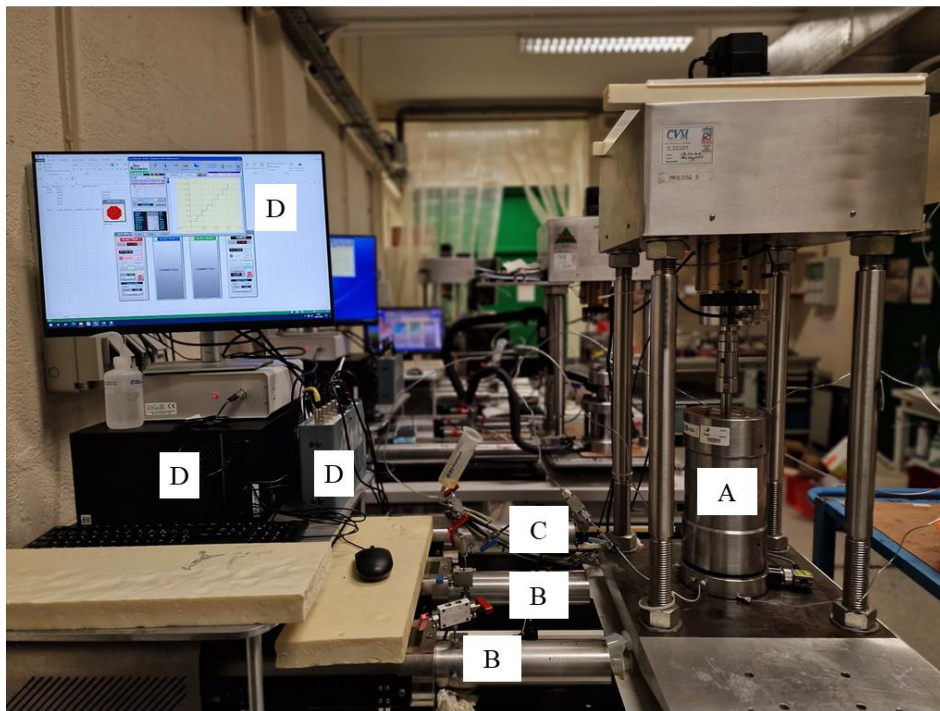


Figure 4-2 : Jauges de déformation et système de coordonnées orientés par rapport au plan de litage de l'échantillon cylindrique d'argilite du COx (isotrope transverse) pour les deux orientations de l'échantillon (parallèle au plan de litage à gauche, perpendiculaire au plan de litage à droite).

4.2. Dispositif expérimental

Les essais hydromécaniques ont été réalisés sur des échantillons cylindriques dans une cellule de compression triaxiale classique en acier (Figure 4-3) où les échantillons sont équipés de jauges de déformation pour mesurer la déformation du matériau pendant l'essai mécanique. La perméabilité à l'eau et au gaz peut être mesurée avec cette cellule triaxiale.



A : Cellule triaxiale en acier
B : Pompe à injection de fluide
C : Pompe à injection d'huile
D : Dispositif d'acquisition

Figure 4-3 : Cellule de compression triaxiale en acier.

La seconde cellule de compression triaxiale, développée pour le projet EURAD, est faite en PEEK, un polycarbonate transparent aux rayons X, ce qui permet de réaliser des scans 3D aux rayons X pendant les essais hydromécaniques. Elle permet d'appliquer des contraintes isotropes et déviatoriques élevées à des échantillons cylindriques de 20 mm de diamètre. La cellule est placée dans un tomographe à rayons X, comme dans les essais d'auto-colmatage (Figure 3-4). La résolution des voxels est d'environ 24 μm . Comme cette cellule triaxiale sera scannée aux rayons X, il n'a pas été possible d'utiliser des jauges de déformation classique pour mesurer la déformation du matériau pendant l'essai mécanique. La perméabilité à l'eau et au gaz peut également être mesurée avec cette cellule triaxiale.

Pendant le chargement mécanique, du gaz est injecté dans les échantillons et la perméabilité est mesurée en continu. L'injection de fluides à différentes pressions dans l'échantillon a été réalisée par des trous de drainage aux deux extrémités de la cellule.

La visualisation et l'analyse des données des voxels de la tomographie assistée par ordinateur sont effectuées à l'aide du logiciel VGStudio MAX (Volume Graphics GmbH), qui permet une analyse précise des données des voxels. Le volume des fissures induites par l'endommagement est ainsi déterminé.

4.3. Protocole expérimental

Trois méthodes de resaturation ont été utilisées dans nos travaux : la resaturation avec injection d'eau sous confinement ($S_r = 100\%$), la resaturation sous cloche sans confinement ($S_r = 100\%$) et l'absence de resaturation ($S_r = \text{saturation naturelle}$).

La première méthode, avec injection d'eau sous confinement, consiste à placer l'échantillon sous confinement dans la cellule triaxiale en acier, puis à injecter de l'eau équilibrée en amont et en aval à une pression de 1 MPa, jusqu'à ce que l'échantillon atteigne une saturation complète ($S_r = 100\%$). Une fois la saturation confirmée (stabilité des volumes d'injection en amont et en aval), l'échantillon est prêt pour l'essai.

La seconde méthode, sous cloche sans confinement, implique de placer l'échantillon dans une cloche maintenue à une hygrométrie de 100 %. Lorsque la masse de l'échantillon se stabilise, la resaturation est considérée comme atteinte, et l'échantillon est prêt à être utilisé.

Enfin, le troisième état hydrique correspond à la saturation naturelle, observée juste après le carottage et la conservation sous Parafilm. Dans ce cas, l'échantillon est directement utilisé, sans qu'il ne subisse de processus de resaturation supplémentaire.

4.3.1. Essais avec jauges de déformation

Les essais de compression triaxiale avec injection de gaz (à température ambiante) sont réalisés selon le protocole suivant :

1. Une fois que les jauges de déformation ont été collées, les échantillons cylindriques sont insérés dans une membrane en Viton®, et placés dans la cellule triaxiale en acier.
 - La resaturation sous cloche sans confinement se fait avant de placer l'échantillon dans la cellule triaxiale en acier.
2. La contrainte hydrostatique (pression de confinement) est ensuite augmentée à 12 MPa. Cette pression de confinement est maintenue constante tout au long de l'essai.
 - La resaturation avec de l'eau équilibrée se fait juste après avoir mis l'échantillon sous confinement.
3. Après stabilisation de la pression de confinement ou la resaturation dans le cas de la resaturation sous confinement, la pression de percée du gaz est déterminée à l'aide d'une pression imposée (méthode par étapes) (Didier, 2012).
 - Une pression de gaz (5 MPa) est imposée en amont (en aval, maintenue à la pression atmosphérique).
 - Cette pression est maintenue pendant 7 jours.
 - En l'absence d'augmentation du volume d'injection de gaz pendant cette période, la pression en amont est augmentée de 1 MPa.
 - Cette opération est répétée tous les 7 jours jusqu'à ce qu'une augmentation du volume de gaz injecté pendant l'étape de pression soit observée et que le gaz soit libéré en aval.
4. Une fois que la pression de percée du gaz a été déterminée, elle est imposée en amont et l'aval est maintenu à la pression atmosphérique pendant le chargement déviatorique (essai de compression triaxiale).
5. La contrainte déviatorique est ensuite augmentée jusqu'à la rupture sous un déplacement contrôlé (40×10^{-6} mm/s) et la perméabilité au gaz est mesurée en continu. Tous les 5 MPa, la contrainte déviatorique est maintenue constante pendant 2 heures afin de mesurer correctement la perméabilité au gaz.

Pendant l'essai, les volumes de gaz injecté, les déplacements (capteurs LVDT entre les plateaux de presse mécanique) et les déformations de l'échantillon (avec des jauges de déformation) sont mesurés en continu. Un essai dans chaque direction (parallèle et perpendiculaire au plan de litage) a été réalisé. Les références des différents échantillons, ainsi que leurs caractéristiques et conditions expérimentales, sont présentées dans le Tableau 4-1.

Tableau 4-1 : Références, caractéristiques et conditions expérimentales correspondantes des différents échantillons pour les essais avec jauges de déformation.

Échantillon	Sondage	Orientation	%CaCO ₃	Etat hydrique	Fluide injecté	Température (°C)
EST66423-06	OHZ3010 14,16 – 14,46 m	Parallèle	26,6	Resaturé avec injection d'eau équilibré sous confinement	Azote	20
EST66727-06	PGZ3004 19,96 – 20,34 m	Parallèle	21,2	Resaturé sous cloche (HR = 100%)	Azote	20
EST66721-01	PGZ3004 19,08 – 19,38 m	Parallèle	22,27	Sans resaturation	Azote	20
EST66721-18	PGZ3004 19,08 – 19,38 m	Perpendiculaire	22,27	Sans resaturation	Azote	20

4.3.2. Essais sous tomographe

Les essais de compression triaxiale avec injection de gaz (à température ambiante) avec tomographie aux rayons X sont effectués avec un état hydrique de resaturation naturelle selon la procédure suivante :

1. Les échantillons cylindriques sans jauges de déformation sont insérés dans une membrane en Viton® et placés dans la cellule triaxiale en PEEK®.
2. La contrainte hydrostatique (pression de confinement) est ensuite augmentée à 12 MPa. Cette pression de confinement est maintenue constante tout au long de l'essai.
3. Une fois que la pression de confinement s'est stabilisée, un premier scan 3D aux rayons X est effectué pour enregistrer l'état initial de l'échantillon.
4. Après le premier scan 3D aux rayons X effectué, la pression de percée du gaz est déterminée à l'aide d'une pression imposée (méthode par étapes) (Didier, 2012) :
 - Une pression de gaz (5 MPa) est imposée en amont (en aval, maintenue à la pression atmosphérique).
 - Cette pression est maintenue pendant 7 jours.
 - En l'absence d'augmentation du volume d'injection de gaz pendant cette période, la pression en amont est augmentée de 1 MPa.
 - Cette opération est répétée tous les 7 jours jusqu'à ce qu'une augmentation du volume de gaz injecté pendant l'étape de pression soit observée et que le gaz soit libéré en aval.
5. Une fois que la pression de percée du gaz a été déterminée, elle est appliquée en amont tandis que l'aval est maintenu à la pression atmosphérique pendant le chargement déviatorique (essai de compression triaxiale).
6. La contrainte déviatorique est ensuite augmentée par paliers jusqu'à une valeur proche de la rupture, et la perméabilité au gaz est mesurée en continu. À chaque palier de 10 MPa (et ensuite de 5 MPa lorsque l'on approche de la rupture), la contrainte déviatorique est maintenue constante pendant le temps d'un

scan TOMO (~ 2 heures) afin de mesurer précisément la perméabilité au gaz et de réaliser les scans 3D aux rayons X pour étudier l'évolution des fissures.

Durant l'essai, les volumes de gaz injectés sont mesurés en continu. Un seul test dans la direction perpendiculaire au plan de litage a été réalisé jusqu'à présent. La référence de l'échantillon, ainsi que ses caractéristiques et conditions expérimentales, sont exposées dans le Tableau 4-2.

Tableau 4-2 : Références, caractéristiques et conditions expérimentales correspondantes des différents échantillons pour les essais sous tomographie.

Échantillon	Sondage	Orientation	%CaCO ₃	Etat hydrique	Fluide injecté	Température (°C)
EST66697-11	PGZ3004 10,51 – 10,91 m	Perpendiculaire	26,8	Sans resaturation	Azote	20

4.4. Mesure de perméabilité et Tomographie 3D au rayon X : acquisition et analyse des Voxels

La perméabilité au gaz, a été mesurée en laboratoire à l'équilibre en utilisant l'équation de Darcy pour l'écoulement des gaz compressibles (2.7) présentée dans le paragraphe 2.1. Cette perméabilité mesurée au gaz est une "perméabilité apparente", mais étant donné que la pression de gaz est élevée, les effets de Klinkenberg ou de glissement sont probablement négligeables dans ce cas. Par conséquent, la perméabilité mesurée peut être considérée comme étant la perméabilité intrinsèque. La viscosité dynamique du gaz, notée μ_g employée dans cette étude, correspond à celle de l'azote à température ambiante (20°C) et s'élève à $1,7572 \times 10^{-5}$ Pa.s.

En ce qui concerne les essais réalisés sous tomographie, le même dispositif expérimental ainsi que les mêmes paramètres d'acquisition ont été employés conformément à ce qui a été détaillé dans le paragraphe 3.5. Une fois que le volume de l'échantillon a été reconstitué en 3D, les images ont été soumises à une analyse détaillée à l'aide du logiciel VGStudio MAX (Volume Graphics GmbH). Ce logiciel offre la possibilité d'isoler, de visualiser et d'évaluer de manière quantitative les fissures pendant l'augmentation de la contrainte déviatorique. Cependant, le principal défi résidait dans la distinction des petites fissures du reste de l'échantillon après la reconstruction. Pour surmonter cette difficulté, une méthode basée sur l'analyse de porosité/inclusion du VGSTUDIO MAX 3.5 a été utilisée, en se limitant au seuil, de la même manière que pour le traitement d'image post-essais d'auto-colmatage, comme décrit dans le paragraphe 3.5. Il convient de noter que le logiciel VG Studio Max guide l'utilisateur dans la détermination de la valeur du seuil. Ce dernier sélectionne initialement les pixels associés au fond (vides ou fissures dans notre cas) et ceux liés au matériau (argile dans notre cas). Ensuite, le logiciel calcule de manière approximative la valeur du seuil, laquelle peut varier d'un scan à l'autre.

4.5. Résultats et analyse

Nous avons effectué plusieurs essais afin de définir le protocole expérimental décrits dans le paragraphe 4.3. Nous avons rencontré plusieurs difficultés, telles que la disponibilité de certains équipements, ce qui nous a contraint à redéfinir un protocole adapté aux équipements disponibles. Dans ce rapport, nous présentons d'abord les essais pilotes ayant permis de mieux définir le protocole de resaturation des

échantillons puis les résultats obtenus avec le protocole retenu. Les essais ont été menés sur des échantillons orientés à la fois parallèlement et perpendiculairement au plan de litage.

4.5.1. Essais avec jauges de déformation

4.5.1.1 Essais pilotes

Nous avons mené des essais pilotes en variant la méthode de resaturation des échantillons de COx afin de déterminer le meilleur protocole. Dans un premier temps, nous avons placé un échantillon parallèle (EST66423-06 avec %CaCO₃ = 26.6) dans une cellule triaxiale en acier et nous avons injecté de l'eau équilibrée en amont et en aval à une pression de 1 MPa afin de resaturer l'échantillon ($S_r = 100\%$). Une fois la saturation atteinte (volume d'injection amont et aval stable), nous avons procédé à l'essai de fracturation avec injection de gaz, tel que décrit dans le paragraphe 4.3. À une pression d'environ 8 MPa, le gaz a commencé à s'écouler à travers l'échantillon parallèle avec une pression de confinement de 12 MPa. Par conséquent, nous avons décidé de poursuivre le test avec une pression de gaz de 9 MPa, maintenue constante tout au long de l'expérience, afin de mesurer la perméabilité au gaz de l'échantillon lors de l'essai de compression triaxiale. Les courbes contrainte-déformation de cet essai de compression triaxiale sont représentées dans la Figure 4-4 : déformations axiale (ϵ_{11}) et latérale (ϵ_{33}) mesurées par les jauges de déformation. La déformation latérale ϵ_{22} n'a pas pu être mesurée au cours de l'essai, donc la déformation volumétrique (ϵ_v) n'a pas pu être calculée. La Figure 4-5 représente l'évolution de la courbe de déplacement axial (mesuré par des capteurs LVDT entre les plateaux de la presse mécanique) en fonction de la contrainte déviatorique. Sur cet échantillon, orienté parallèlement au plan de litage, nous avons obtenu une contrainte déviatorique à la rupture (résistance maximale) égale à 19,62 MPa. Cette contrainte à la rupture est beaucoup plus faible que la valeur habituellement obtenue pour un confinement de 12 MPa.

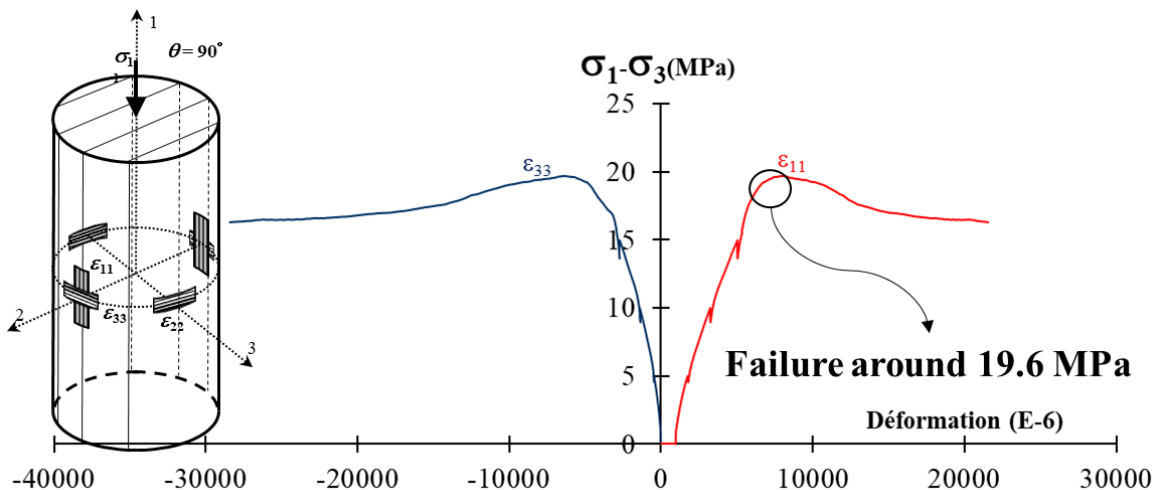


Figure 4-4 : Courbes contrainte déviatorique -déformations d'un échantillon parallèle (EST 66423-06 //).

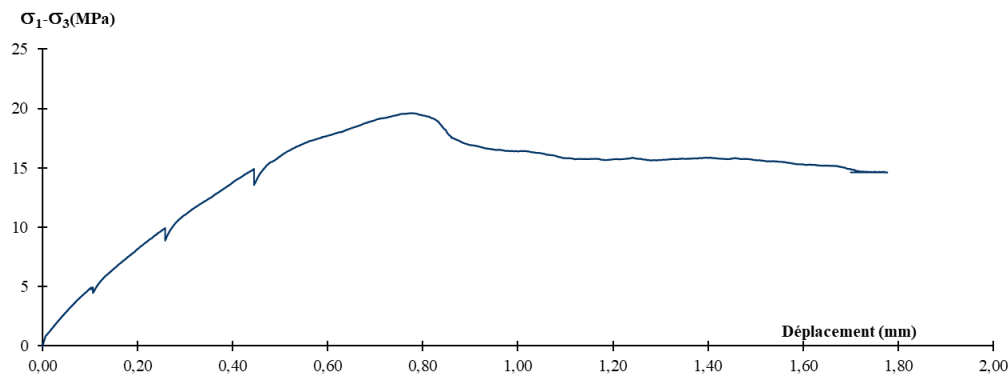


Figure 4-5 : Courbe contrainte déviatorique -déplacement axial d'un échantillon parallèle (EST 66423 - 06 //).

La Figure 4-6 illustre graphiquement l'évolution de la perméabilité au gaz et de la contrainte déviatorique au fil du temps. Initialement, la perméabilité au gaz était évaluée à environ $1,85 \times 10^{-19} \text{ m}^2$. À mesure que la contrainte déviatorique augmente, cette perméabilité diminue progressivement jusqu'à atteindre environ $2,12 \times 10^{-20} \text{ m}^2$, suggérant vraisemblablement la fermeture des fissures initiales induite par la compression axiale de l'échantillon. Cependant, on observe une augmentation significative de la perméabilité au gaz, atteignant environ $2,54 \times 10^{-18} \text{ m}^2$, attribuable à l'endommagement du matériau.

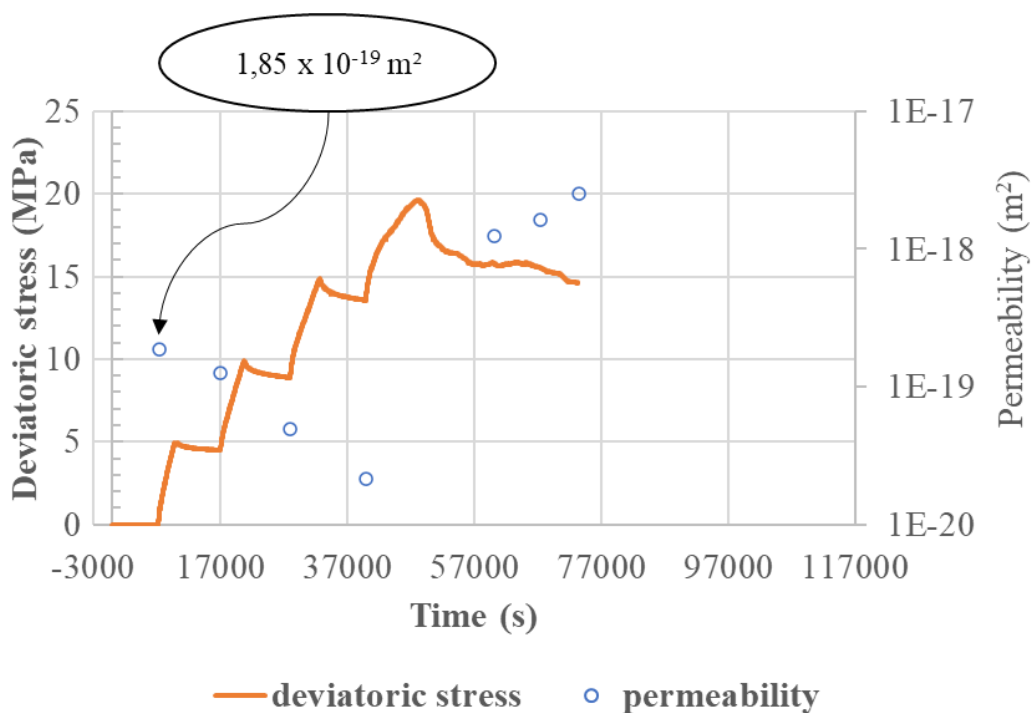


Figure 4-6 : Evolution de la perméabilité au gaz et de la contrainte déviatorique en fonction du temps d'un échantillon parallèle (EST 66423 - 06 //).

Dans un second temps, un essai a été réalisé sur un échantillon parallèle au plan de litage (EST66727-6 avec $\% \text{CaCO}_3 = 21,2$), en resaturant préalablement l'échantillon sous une cloche présentant une hygrométrie de 100%. Avant d'être placés sous cloche, l'échantillon a été équipé de jauges puis placé dans une membrane en Viton© sans confinement. Une fois la resaturation atteinte (mesure de masse stable), l'essai a été effectué en suivant le protocole expérimental décrit dans le paragraphe 4.3. Juste après la

resaturation, une ouverture visible de l'échantillon au niveau du litage a été constatée (Figure 4-7), due au manque de confinement et à la resaturation.



Figure 4-7 : Échantillon parallèle (EST66727-06//) après resaturation sous cloche sans confinement.

À une pression d'environ 1 MPa, le gaz a commencé à s'écouler à travers l'échantillon parallèle (EST66727-6 avec %CaCO₃ = 21,2) avec une pression de confinement de 12 MPa. L'essai a été réalisé avec une pression de gaz maintenue constante à 1 MPa, nous permettant ainsi de mesurer la perméabilité au gaz de l'échantillon pendant l'essai de compression triaxiale. Les courbes contrainte-déformation de cet essai de compression triaxiale sont représentées dans la Figure 4-8 : déformations axiale (ϵ_{11}), latérale (ϵ_{22} et ϵ_{33}) et volumétrique (ϵ_v) mesurées par les jauges de déformation. La Figure 4-9 illustre l'évolution de la courbe de déplacement axial (mesuré par des capteurs LVDT entre les plateaux de la presse mécanique) en fonction de la contrainte déviatorique. Sur cet échantillon, orienté parallèlement au plan de litage, nous avons obtenu une contrainte déviatorique à la rupture (résistance maximale) égale à 26,66 MPa. Cette contrainte à la rupture est sensiblement plus faible que la valeur habituellement obtenue pour un confinement de 12 MPa.

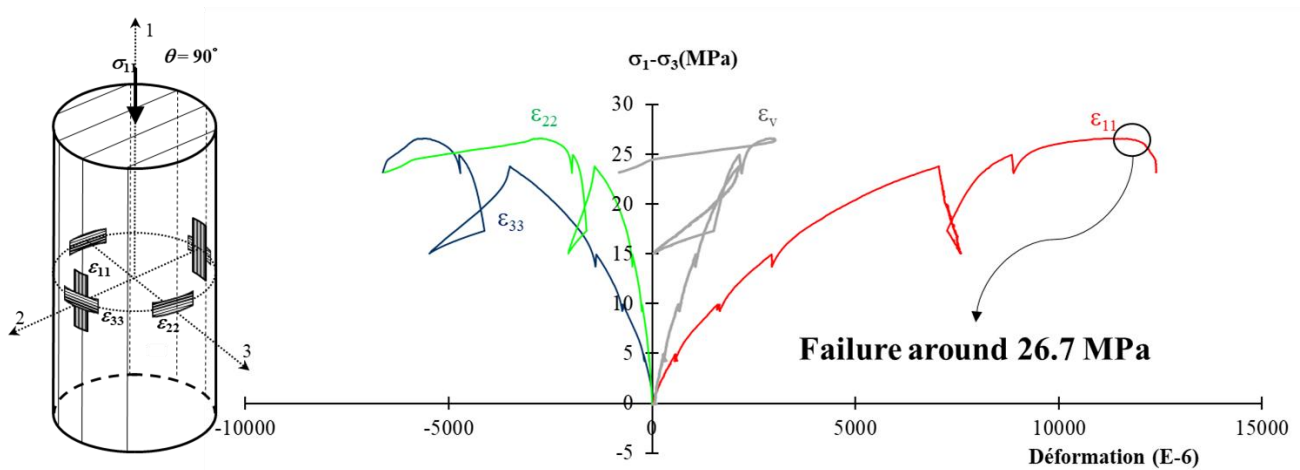


Figure 4-8 : Courbes contrainte déviatorique-déformations d'un échantillon parallèle (EST 66727-06 //).

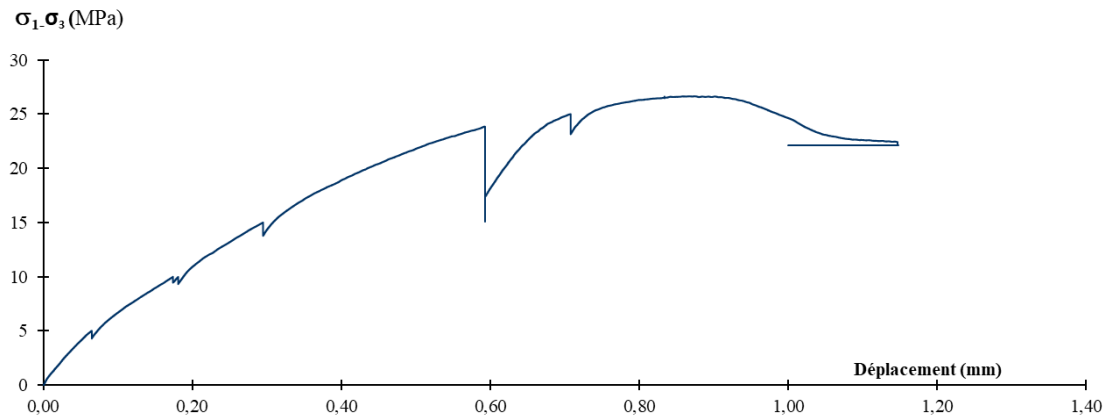


Figure 4-9 : Courbe contrainte déviatorique -déplacement axial d'un échantillon parallèle (EST 66727 - 06 //).

La représentation graphique de l'évolution de la perméabilité au gaz et de la contrainte déviatorique au fil du temps est illustrée dans la Figure 4-10, tandis que la Figure 4-11 met en évidence l'évolution de la perméabilité au gaz et de la déformation volumique. Initialement, la perméabilité au gaz était évaluée à environ $4,55 \times 10^{-18} \text{ m}^2$. Au fur et à mesure de l'accroissement de la contrainte déviatorique, cette perméabilité diminue graduellement, suggérant vraisemblablement la fermeture des macro et microfissures initiales induite par la compression axiale de l'échantillon et par la resaturation sous cloche. Pendant cette diminution de la perméabilité, la déformation volumique est contractante. À proximité de la rupture et du seuil de dilatation, identifiable sur la courbe de déformation volumique, on observe toujours une diminution de la perméabilité au gaz.

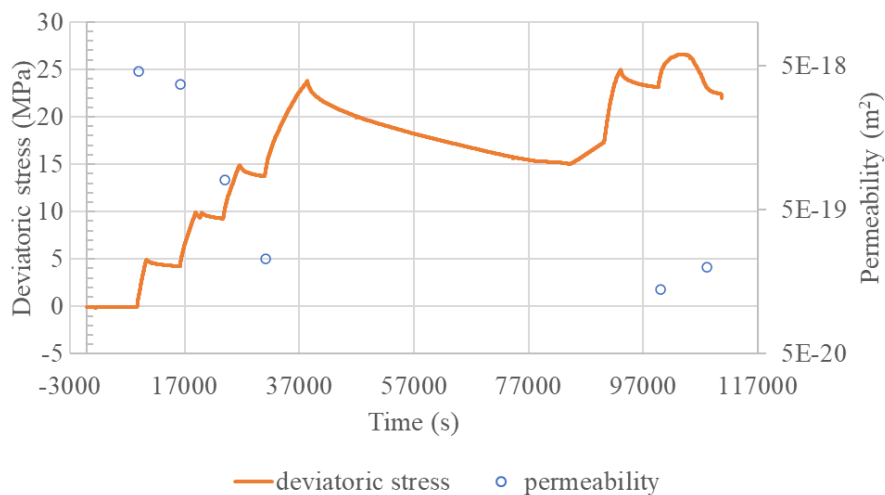


Figure 4-10 : Evolution de la perméabilité au gaz et de la contrainte déviatorique en fonction du temps d'un échantillon parallèle (EST 66727 - 06 //).

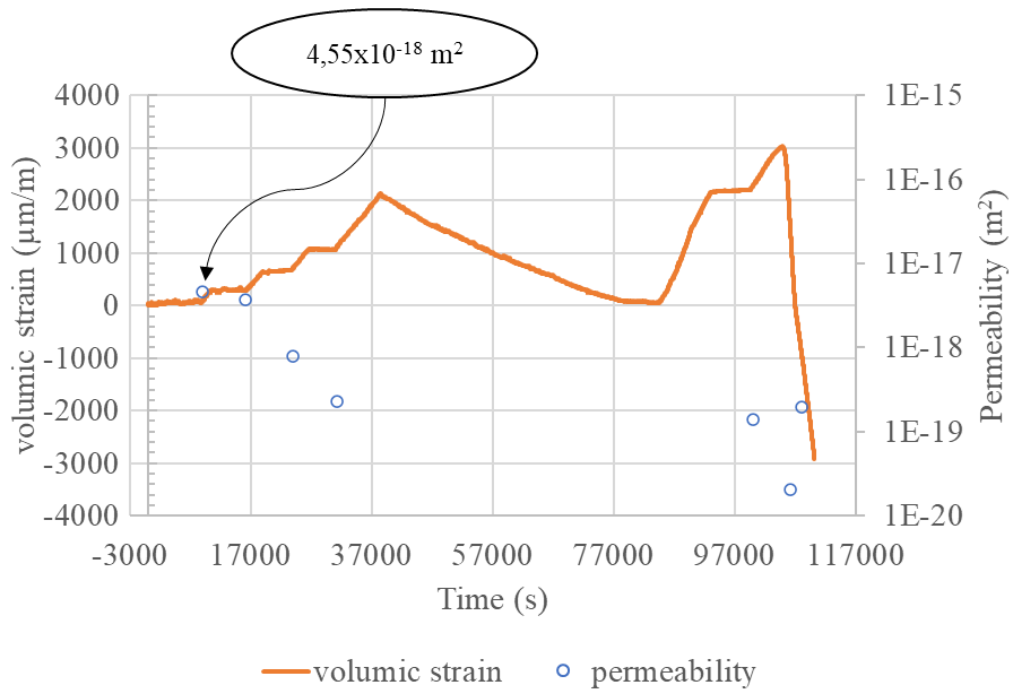


Figure 4-11 : Évolution de la perméabilité au gaz et de la déformation volumique en fonction du temps d'un échantillon parallèle (EST 66727 - 01 //).

4.5.1.2 Essais réalisés

Les essais ont été menés sur des échantillons orientés à la fois parallèlement et perpendiculairement au plan de litage, en procédant comme décrit dans le paragraphe 4.3 et en respectant avant l'essai le processus de conservation de l'échantillon tel que décrit dans le paragraphe 4.2.

A une pression d'environ 7 MPa, le gaz a commencé à s'écouler à travers l'échantillon parallèle (EST66721-01 avec %CaCO₃ = 22,27) avec une pression de confinement de 12 MPa. Nous avons donc décidé de réaliser le test avec une pression de gaz de 8 MPa. Cette pression de gaz a été maintenue constante et nous a permis de mesurer la perméabilité au gaz de l'échantillon pendant l'essai de compression triaxiale. Les courbes contrainte-déformation de cet essai de compression triaxiale sont représentées dans la Figure 4-12 : déformations axiale (ϵ_{11}), latérale (ϵ_{22} and ϵ_{33}) et volumétrique (ϵ_v) mesurées par les jauges de déformation. La Figure 4-13 représente l'évolution de la courbe de déplacement axial (mesuré par des capteurs LVDT entre les plateaux de la presse mécanique) en fonction de la contrainte déviatorique. Sur cet échantillon, orienté parallèlement au plan de litage, nous avons obtenu une contrainte déviatorique à la rupture (résistance maximale) égale à 30,4 MPa.

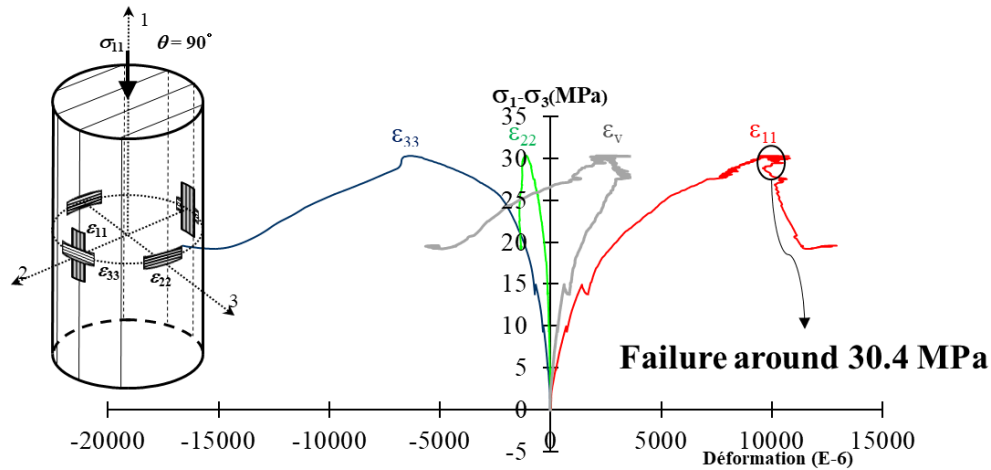


Figure 4-12 : Courbes contrainte déviatorique -déformations d'un échantillon parallèle (EST 66721 - 01 //).

EST 66721 - 01 //

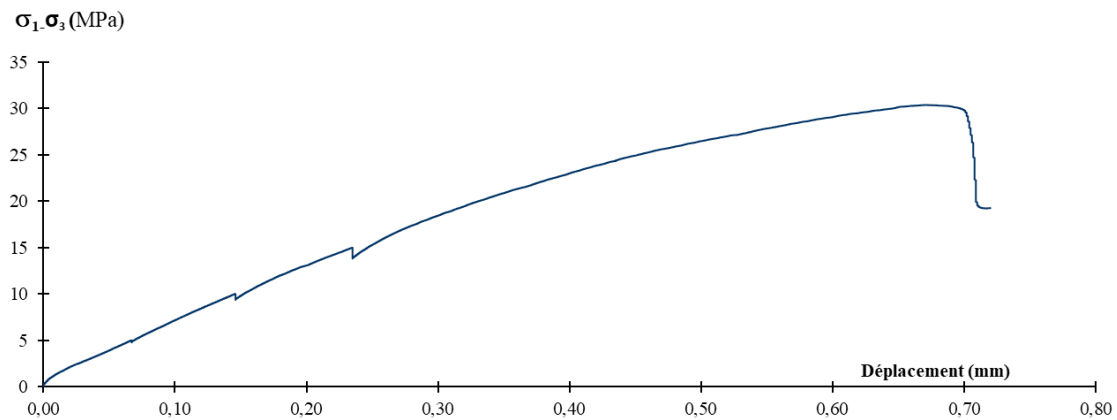


Figure 4-13 : Courbe contrainte déviatorique -déplacement axial d'un échantillon parallèle (EST 66721 - 01 //).

La représentation graphique de l'évolution de la perméabilité au gaz et de la contrainte déviatorique au fil du temps est illustrée dans la Figure 4-14, tandis que la Figure 4-15 met en évidence l'évolution de la perméabilité au gaz et de la déformation volumique. Initialement, la perméabilité au gaz était évaluée à environ $8 \times 10^{-20} \text{ m}^2$. Au fur et à mesure de l'accroissement de la contrainte déviatorique, cette perméabilité diminue graduellement jusqu'à atteindre environ $2 \times 10^{-20} \text{ m}^2$, suggérant vraisemblablement la fermeture des fissures initiales induite par la compression axiale de l'échantillon. Pendant cette diminution de la perméabilité, la déformation volumique est contractante.

À proximité de la rupture et du seuil de dilatation, identifiable sur la courbe de déformation volumique, on observe une augmentation significative de la perméabilité au gaz, atteignant environ $3 \times 10^{-18} \text{ m}^2$, attribuable à l'endommagement du matériau. Cette dilatation volumique découle de l'ouverture de microfissures.

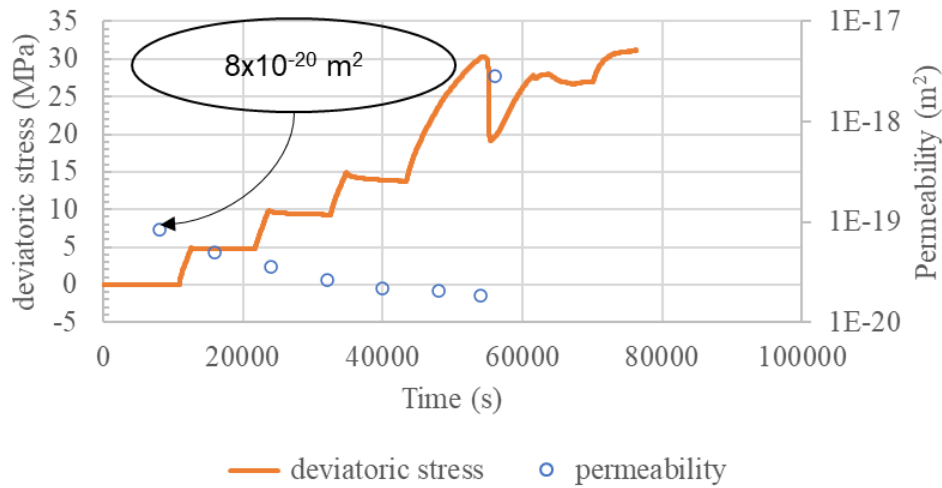


Figure 4-14 : Evolution de la perméabilité au gaz et de la contrainte déviatorique en fonction du temps d'un échantillon parallèle (EST 66721 - 01 //).

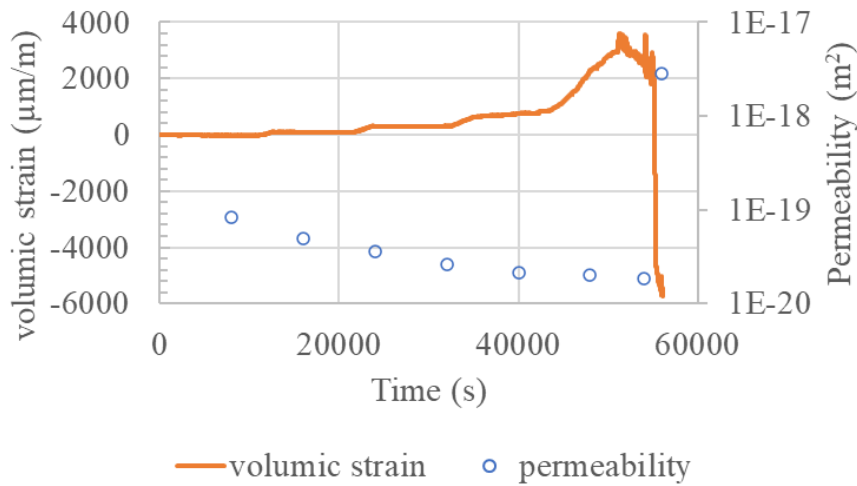


Figure 4-15 : Évolution de la perméabilité au gaz et de la déformation volumique en fonction du temps d'un échantillon parallèle (EST 66721 - 01 //).

À une pression avoisinant les 5 MPa, nous avons observé le début de l'écoulement de gaz à travers l'échantillon orienté perpendiculairement (EST66721-18 avec %CaCO₃ = 22,27) sous une pression de confinement de 12 MPa. Par conséquent, nous avons décidé de procéder au test avec une pression de gaz de 7 MPa, maintenue constante tout au long de l'expérience, afin de mesurer la perméabilité au gaz de l'échantillon lors de l'essai de compression triaxiale. Les courbes contrainte-déformation de cet essai, illustrant les déformations axiale (ϵ_{33}), latérale (ϵ_{11}) et volumétrique (ϵ_v) mesurées par les jauges de déformation, sont présentées dans la Figure 4-16. Par ailleurs, la Figure 4-17 montre l'évolution de la courbe de déplacement axial, mesuré par des capteurs LVDT entre les plateaux de la presse mécanique, en fonction de la contrainte déviatorique. Sur cet échantillon, orienté perpendiculairement au plan de litage, nous avons obtenu une contrainte déviatorique à la rupture, équivalente à la résistance maximale, s'élevant à 34,9 MPa.

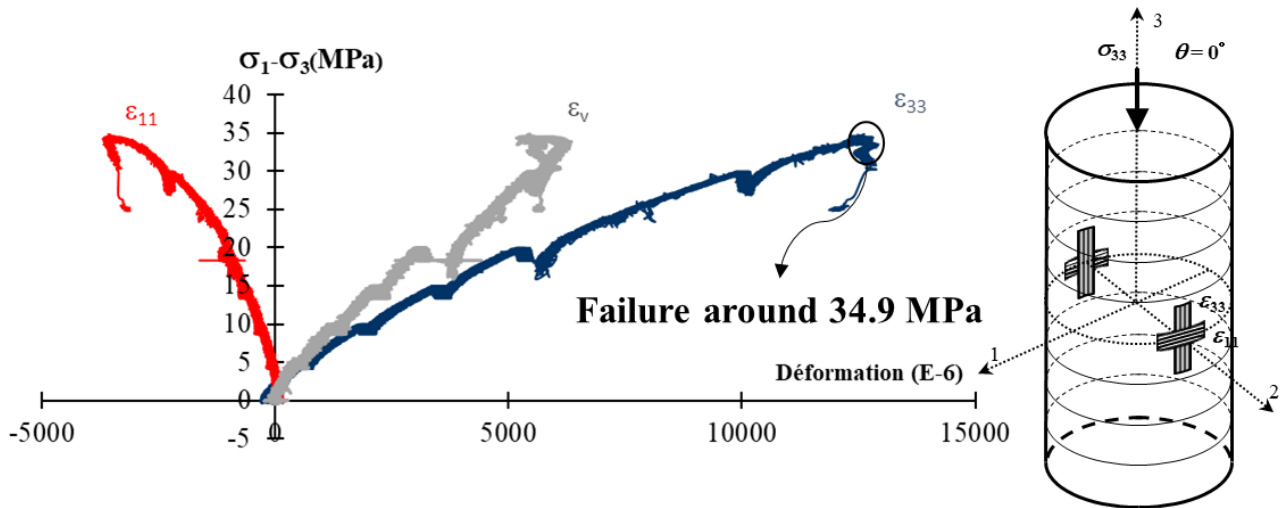


Figure 4-16 : Courbes contrainte déviatorique -déformations de l'échantillon perpendiculaire (EST 66721 - 18 L).

EST 66721 - 18 L

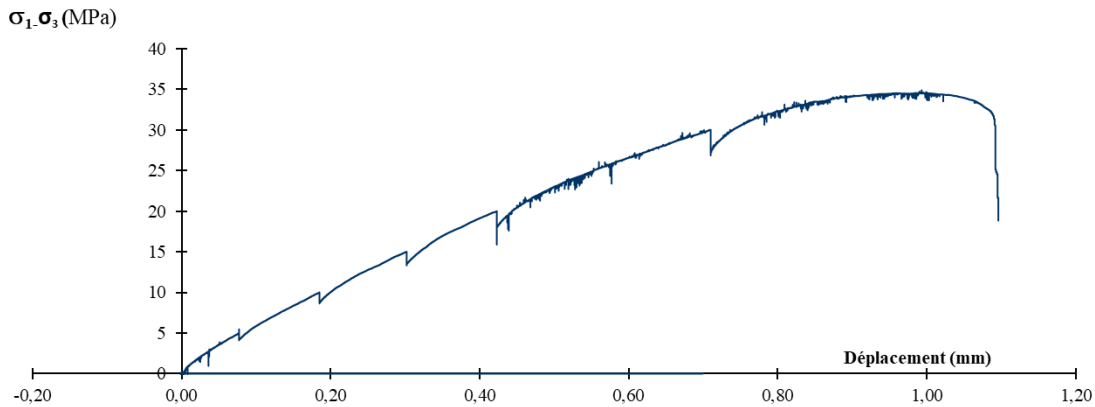


Figure 4-17 : Courbe contrainte déviatorique -déplacement axial de l'échantillon perpendiculaire (EST 66721 - 18 L).

La Figure 4-18 illustre l'évolution de la perméabilité au gaz et de la contrainte déviatorique en fonction du temps, tandis que la Figure 4-19 présente l'évolution de la perméabilité au gaz et de la déformation volumétrique au fil du temps. Initialement, la perméabilité au gaz était d'environ $6 \times 10^{-21} \text{ m}^2$. Au fur et à mesure que la contrainte déviatorique augmente, la perméabilité au gaz diminue progressivement jusqu'à atteindre environ $2 \times 10^{-21} \text{ m}^2$, probablement en raison de la fermeture des fissures initiales induite par la compression axiale de l'échantillon.

À proximité de la rupture et du seuil de dilatance (indiqué par la courbe de déformation volumique), on observe une augmentation significative de la perméabilité au gaz, atteignant environ $3 \times 10^{-20} \text{ m}^2$, en raison de l'endommagement du matériau. Cette augmentation est attribuable à l'ouverture de microfissures, ce qui induit un endommagement anisotrope par microfissuration pendant la charge déviatorique. Ce phénomène est probablement associé à l'ouverture de microfissures axiales (verticales), perpendiculaires à la direction du plan de litage.

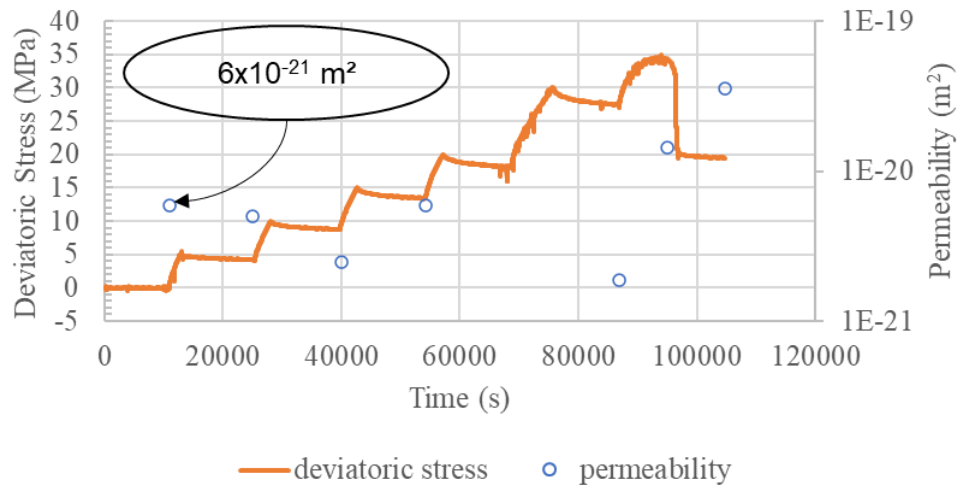


Figure 4-18 : Evolution de la perméabilité au gaz et de la contrainte déviatorique en fonction du temps d'un échantillon perpendiculaire (EST 66721 - 18 L).

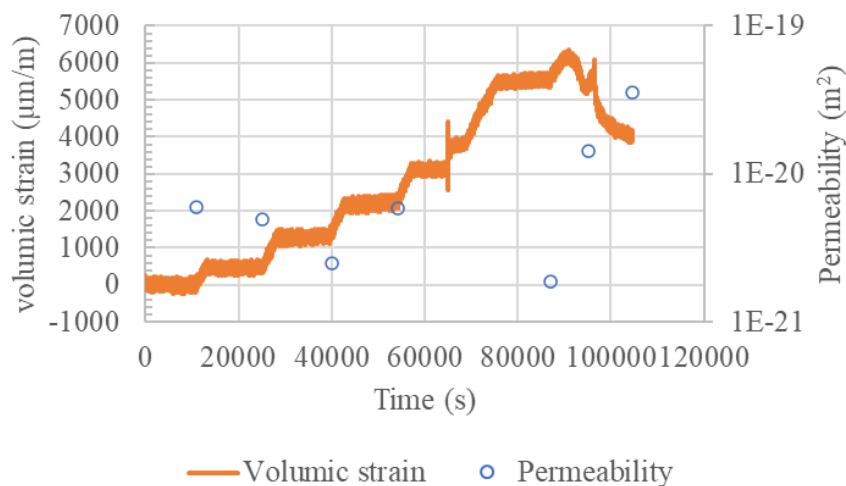


Figure 4-19 : Évolution de la perméabilité au gaz et de la déformation volumique en fonction du temps d'un échantillon perpendiculaire (EST 66721 - 18 L).

4.5.2. Essais sous tomographe

L'essai a été mené sur un échantillon orienté perpendiculairement au plan de litage, en procédant comme décrit dans le paragraphe 4.3 et en respectant avant l'essai le processus de conservation de l'échantillon tel que décrit dans le paragraphe 4.2.

À une pression d'environ 5 MPa, le gaz a commencé à s'écouler à travers l'échantillon perpendiculaire (EST66697-11 avec %CaCO₃ = 26,8) soumis à une pression de confinement de 12 MPa. Nous avons donc décidé de maintenir la pression de gaz à 6 MPa pour réaliser le test. Cette pression de gaz constante nous a permis de mesurer la perméabilité au gaz de l'échantillon tout au long de l'essai de compression triaxiale. Les déformations n'ont pas été mesurées pendant cet essai, car les jauges de déformation n'ont pas été placées sur l'échantillon en raison du bruit potentiel qu'elles pourraient générer pendant l'acquisition au tomographe. Cet échantillon, orienté perpendiculairement au plan de stratification, n'a pas atteint le point de rupture, un problème avec le dispositif expérimental étant survenu après le scan du second palier (20 MPa de contrainte déviatorique), entraînant l'arrêt de l'essai. La Figure 4-20 illustre l'évolution de

l'injection de gaz et de la contrainte déviatorique pendant la partie valide de l'expérience. À mesure que la contrainte déviatorique augmente, le débit d'injection de gaz diminue.

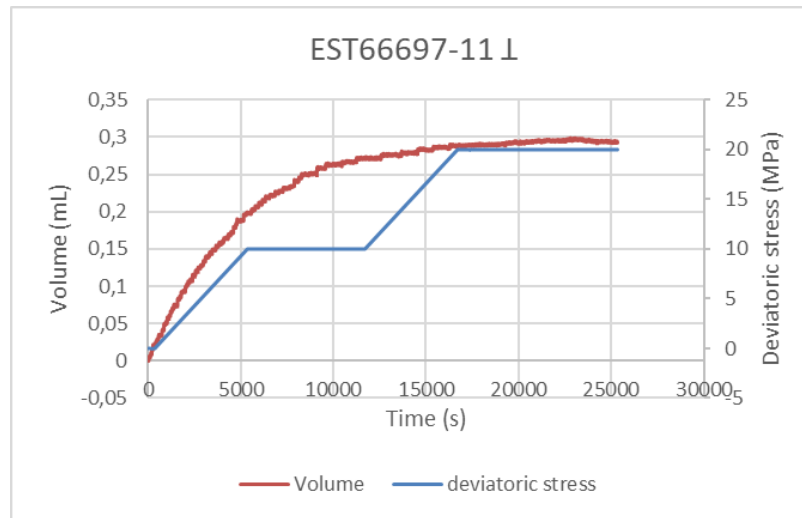


Figure 4-20 : Evolution du volume de gaz injecté et de la contrainte déviatorique en fonction du temps d'un échantillon perpendiculaire (EST66697-11 L).

La Figure 4-22 illustre l'évolution temporelle de la perméabilité au gaz et de la contrainte déviatorique. Initialement, la perméabilité au gaz était évaluée à environ $1,54 \times 10^{-20} \text{ m}^2$. À mesure que la contrainte déviatorique augmente, cette perméabilité diminue progressivement pour atteindre environ $1,06 \times 10^{-21} \text{ m}^2$, ce qui semble indiquer la fermeture des microfissures initiales induite par la compression axiale de l'échantillon.

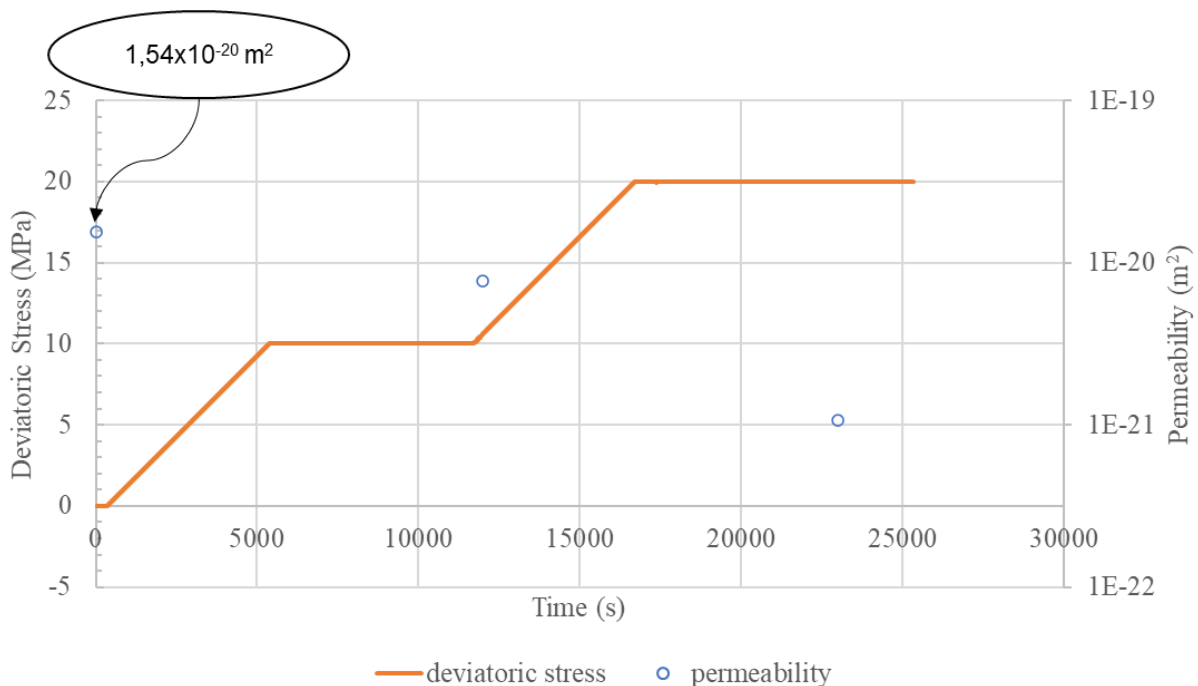


Figure 4-21 : Evolution de la perméabilité au gaz et de la contrainte déviatorique en fonction du temps d'un échantillon perpendiculaire (EST66697-11 L).

Les Figure 4-22, 4-23 et 4-24 montrent l'évolution de l'échantillon obtenue à partir des données de la tomographie 3D aux rayons X sur l'échantillon EST66697-11 testé à température ambiante avec injection de gaz pour des déviateurs de 0, 10 et 20 MPa.

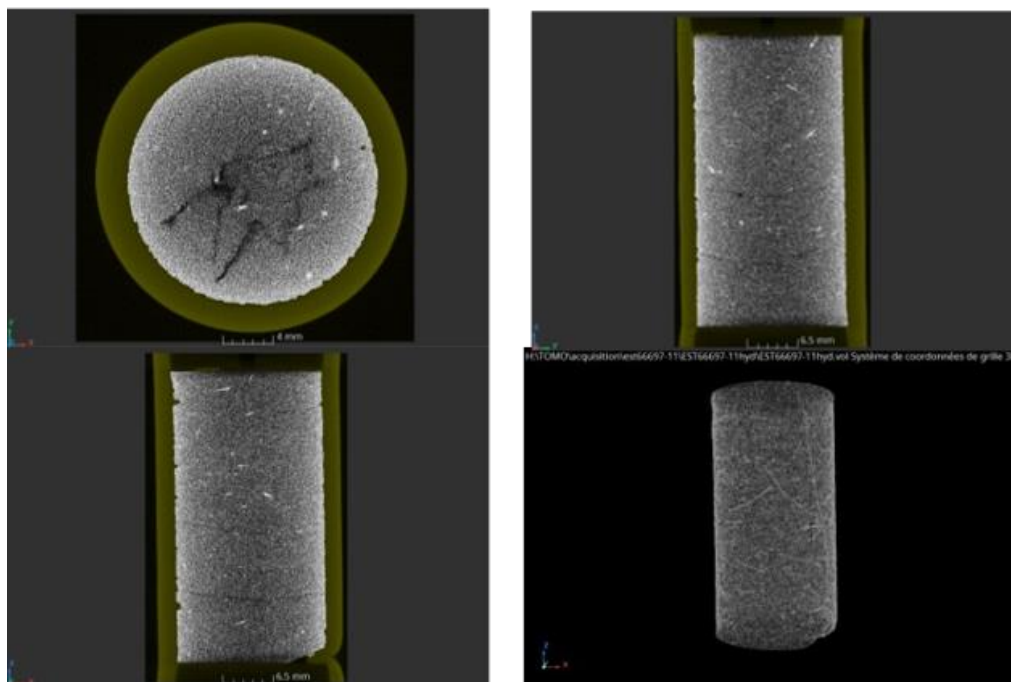


Figure 4-22 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST66697-11 juste après le chargement hydrostatique montrant : des coupes suivant les plans 1-2 (en haut à gauche), 1-3 (en bas gauche), 2-3 (en haut gauche) et une vue 3D.

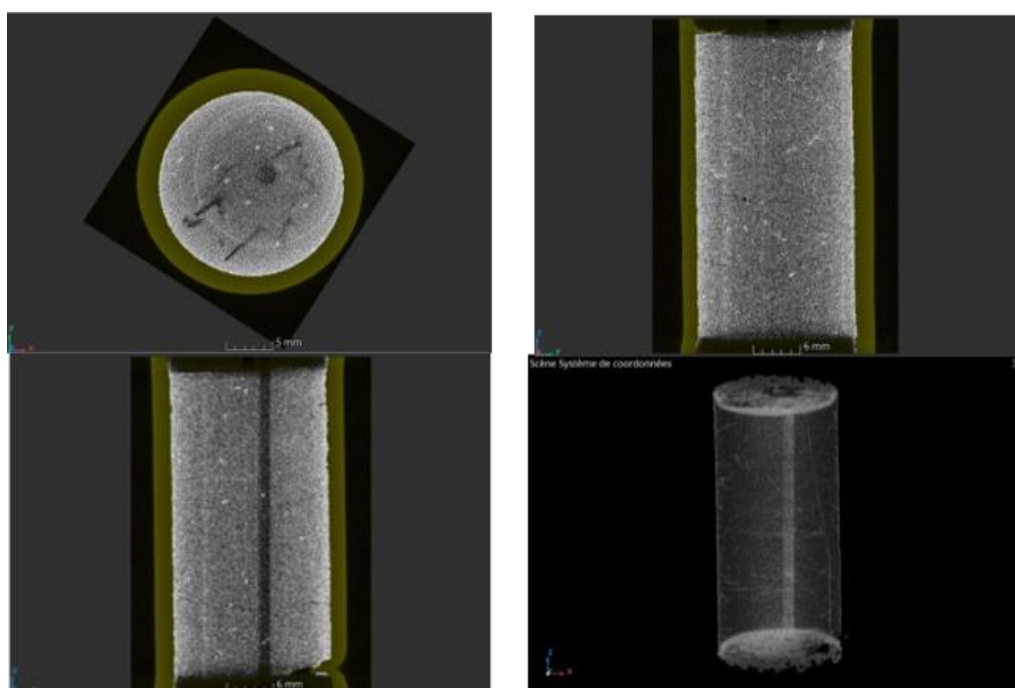


Figure 4-23 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST66697-11 juste après chargement déviatorique de 10 MPa montrant : des coupes suivant les plans 1-2 (en haut à gauche), 1-3 (en bas gauche), 2-3 (en haut gauche) et une vue 3D.

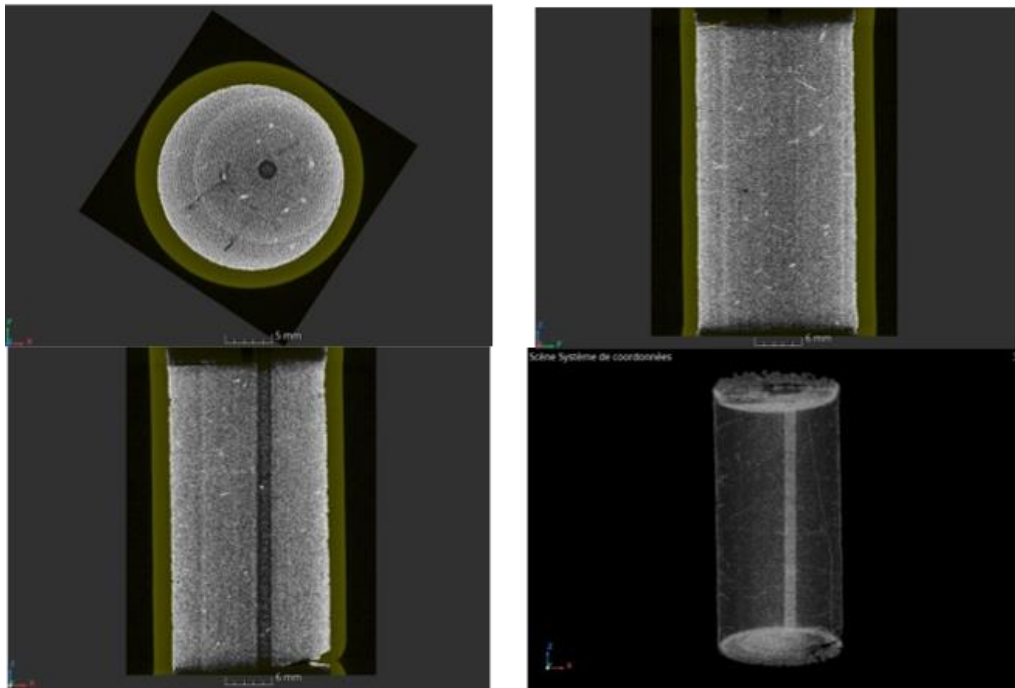


Figure 4-24 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST66697-11 juste après chargement déviatorique de 20 MPa montrant : des coupes suivant les plans 1-2 (en haut à gauche), 1-3 (en bas gauche), 2-3 (en haut gauche) et une vue 3D.

4.6. Discussion

L'étude de l'influence des fissures résultant de l'endommagement sur la perméabilité au gaz de l'argilite du COx a été conduite au travers d'essais de compression triaxiale avec et sans tomographe. Ces essais ont été spécifiquement élaborés pour évaluer les réponses de l'échantillon dans deux orientations distinctes : parallèle et perpendiculaire au plan de litage. La méthode en régime permanent a été employée pour une évaluation précise de la perméabilité.

Dans un premier temps, des essais pilote ont été réalisés. Le premier essai pilote a été réalisé sur l'échantillon parallèle EST66423-6 (%CaCO₃ = 26.6). La resaturation de l'échantillon dans cet essai a été faite en resaturant l'échantillon dans une cellule triaxiale avec de l'eau équilibrée sous pression. Au début, la perméabilité initiale au gaz était de l'ordre de $1,85 \times 10^{-19} \text{ m}^2$, avec une pression de gaz de 9 MPa et une pression de confinement de 12 MPa. Cette perméabilité au gaz obtenue se rapproche de la perméabilité au gaz (azote) obtenue dans les travaux de Zhang & Rothfuchs (2004) sur l'argilite du COx pour des pressions de confinement légèrement plus élevées mesurées en régime permanent. En effet, dans ces travaux ils obtiennent une perméabilité intrinsèque au gaz pour les échantillons parallèles de $5 \times 10^{-19} \sim 8 \times 10^{-19} \text{ m}^2$ pour une pression de confinement de 14,5 ~ 16,2 MPa. Au cours de cet essai de compression triaxiale, la perméabilité au gaz a d'abord décru jusqu'à environ $2,12 \times 10^{-20} \text{ m}^2$, en raison de la fermeture des fissures initiales engendrée par la compression axiale des échantillons (Figure 4-6). Ce phénomène est étayé par les travaux de Zhang & Rothfuchs (2008) qui observent également une réduction de la perméabilité d'un ou deux ordres de grandeur après la recompaction de leur échantillon d'argilite du COx présentant des fissures préexistantes. Juste après la rupture macroscopique, une augmentation significative de la perméabilité au gaz a été observée, atteignant environ $2,54 \times 10^{-18} \text{ m}^2$ pour l'échantillon parallèle EST66423-06. En revanche, nous avons obtenu une contrainte déviatorique à la rupture égale à 19,62 MPa. Cette valeur est notablement inférieure aux contraintes déviatoriques à la compression à température ambiante et avec un confinement de 12 MPa obtenues dans les travaux de Gbewade *et al.* (2023) (31~37,5

MPa) et Homand et al. (2006) (31,2 MPa). Cette diminution de la résistance à la compression est attribuable au fait que l'argilite en contact avec de l'eau devient plus plastique et donc moins résistante (Conil et al., 2018; Grgic et al., 2023).

Le second essai pilote a été réalisé sur l'échantillon parallèle EST66727-06 (%CaCO₃ = 21,2) qui a été resaturé avant essai sous cloche avec une atmosphère à 100% d'humidité relative. Au début, la perméabilité initiale au gaz était de l'ordre de $4,55 \times 10^{-18}$ m², avec une pression de gaz de 1 MPa et une pression de confinement de 12 MPa. La pression de percée dans cet essai est faible comparée aux autres essais réalisés. Ceci résulte de la resaturation sous cloche et sans confinement, engendrant l'apparition de microfissures suivant le plan de litage et favorisant donc le passage de gaz. L'échantillon s'ouvre au niveau des plans stratifications. Cette perméabilité au gaz obtenue est élevée par rapport à celle (azote) obtenue dans les travaux de Zhang & Rothfuchs (2004) sur l'argilite du COx pour des pressions de confinement légèrement plus élevées mesurées en régime permanent. Au cours de cet essai de compression triaxiale, la perméabilité au gaz décroît jusqu'à la fin de l'essai (Figure 4-10). Ce phénomène est étayé par les travaux de Zhang & Rothfuchs (2008) qui observent également une réduction de la perméabilité d'un ou deux ordres de grandeur après la recompaction de leur échantillon d'argilite du COx présentant des fissures préexistantes.

Ces deux essais nous ont permis de comprendre qu'il est important de prêter attention à la procédure de resaturation des échantillons avant de les utiliser. Il en résulte qu'il est préférable de ne pas resaturer les éprouvettes de COx, quelle que soit la procédure (en cellule sous pression ou sous atmosphère humide), avant de déterminer la pression de percée de gaz et de réaliser l'essai mécanique. Cette conclusion rejoint notamment celle des travaux antérieurs de Conil *et al.* (2018) et de Grgic et al. (2023). Pour remédier à ces problèmes, nous avons donc réalisé nos essais sur des échantillons non restaurés (et donc avec un degré de saturation initial d'environ 95%) qui, entre la préparation de l'éprouvette et la réalisation de l'essai, ont été conservés sous parafilm et placés sous cloche afin d'éviter une désaturation.

Avec cette méthode de conservation de la saturation, nous avons réalisé des essais de compression triaxiale sur des éprouvettes orienté parallèlement et perpendiculairement au litage. Au début de l'essai sur l'échantillon EST66721-01 (%CaCO₃ = 22,27) d'orientation parallèle, la perméabilité initiale au gaz était de l'ordre de 8×10^{-20} m², avec une pression de gaz de 8 MPa et une pression de confinement de 12 MPa. Cette perméabilité au gaz obtenue se rapproche de la perméabilité au gaz (azote) obtenue dans les travaux de Zhang & Rothfuchs (2004) sur l'argilite du COx pour des pressions de confinement légèrement plus élevées mesurées en régime permanent. En effet, dans ces travaux ils obtiennent une perméabilité intrinsèque au gaz pour les échantillons parallèles de $5 \times 10^{-19} \sim 8 \times 10^{-19}$ m² pour une pression de confinement de 14,5 ~ 16,2 MPa. Au cours de cet essai de compression triaxiale, la perméabilité au gaz a d'abord décroît jusqu'à environ 2×10^{-20} m², en raison de la fermeture des fissures initiales engendrée par la compression axiale des échantillons (Figure 4-14). Ce phénomène est étayé par les travaux de Zhang & Rothfuchs (2008) qui observent également une réduction de la perméabilité d'un ou deux ordres de grandeur après la recompaction de leur échantillon d'argilite du COx présentant des fissures préexistantes. Pendant la réduction de la perméabilité au cours de l'essai sur l'échantillon parallèle, la déformation volumique s'est avérée contractante (Figure 4-15). À mesure que la contrainte axiale augmente, le matériau se dilate graduellement en raison de l'ouverture de microfissures orientées axialement. À partir du seuil de dilatance volumique et jusqu'à la rupture macroscopique, une augmentation significative de la perméabilité au gaz a été observée, atteignant environ 3×10^{-18} m² pour l'échantillon parallèle EST66721-01. De manière systématique, la déformation ε_{33} évolue davantage que la déformation ε_{22} pendant le chargement déviatorique (Figure 4-13). Par conséquent, un endommagement anisotrope par microfissuration se manifeste lors du chargement déviatorique, avec une ouverture probable de microfissures principalement

axiales et orientées parallèlement au plan de litage et à la contrainte axiale appliquée. Cette ouverture est donc parallèle à l'axe 3 et perpendiculaire au plan de litage. Cette observation rejoint les conclusions avancées par Grgic *et al.* (2019) à partir de leurs essais de compression uniaxiale sur une autre roche argileuse, associant mesures de déformations et de vitesses d'ondes ultrasoniques, et suggérant ainsi un endommagement induit par microfissuration, favorisant l'ouverture des plans de litage.

Sur l'échantillon perpendiculaire EST 66721-18 (%CaCO₃ = 22,27), la perméabilité initiale au gaz était initialement d'environ 6×10^{-21} m², avec une pression de gaz de 7 MPa et une pression de confinement de 12 MPa. Cette valeur, un ordre de grandeur inférieure à celle de l'orientation parallèle, est conforme aux caractéristiques typiques des roches argileuses isotropes transverses, où la perméabilité mesurée perpendiculairement au plan de litage est généralement inférieure à celle mesurée parallèlement à ce plan. Cette valeur de perméabilité au gaz est en accord avec les résultats de Zhang & Rothfuchs (2004), obtenus avec des pressions de confinement légèrement plus élevées ($6 \times 10^{-20} \sim 1 \times 10^{-19}$ m²) pour une pression de confinement de 14,5 ~ 16,2 MPa). Au fur et à mesure que la contrainte déviatorique augmente, la perméabilité au gaz diminue progressivement jusqu'à atteindre environ 2×10^{-21} m², probablement en raison de la fermeture des fissures initiales induite par la compression axiale de l'échantillon, comme démontré précédemment par Zhang & Rothfuchs (2008). Pendant la diminution de la perméabilité au cours de l'essai sur l'échantillon perpendiculaire, la déformation volumique est contractante comme avec l'échantillon parallèle EST66721-01. À mesure que la contrainte axiale augmente, le matériau se dilate graduellement en raison de l'ouverture de microfissures orientées axialement. À partir du seuil de dilatance volumique et jusqu'à la rupture macroscopique, une augmentation significative de la perméabilité au gaz a été observée, atteignant environ 3×10^{-20} m² pour l'échantillon perpendiculaire en raison de l'endommagement du matériau. Cette augmentation est attribuable à l'ouverture de microfissures, ce qui induit un endommagement anisotrope par microfissuration pendant le chargement déviatorique. Ce phénomène est probablement associé à l'ouverture de microfissures axiales (verticales), perpendiculaires à la direction du plan de litage. Cette interprétation est cohérente avec les conclusions antérieures de Grgic *et al.* (2019) à partir d'essais de compression uniaxiale sur une autre argilite et par Sarout *et al.* (2007) à partir d'essais de compression triaxiale sur l'argilite du COx, tous deux avec des mesures de déformations et de vitesses d'ondes ultrasonores.

Pour examiner l'évolution des fissures au cours de l'essai de compression triaxiale avec injection de gaz, nous avons effectué un essai sur l'échantillon EST 66697-11 (%CaCO₃ = 26,8), orienté perpendiculairement au plan de litage, sous tomographe 3D à rayons X. Au début de l'essai, la perméabilité initiale au gaz était d'environ $1,54 \times 10^{-20}$ m² avec une pression de gaz de 6 MPa et une pression de confinement de 12 MPa, en accord avec les résultats antérieurs (Zhang & Rothfuchs, 2004). À mesure que la contrainte déviatorique augmente, la perméabilité au gaz diminue progressivement, comme observé lors de l'essai sur l'échantillon EST 66721-18. Cette diminution de la perméabilité correspond à la réduction des microfissures existantes, comme le montrent les Figure 4-22, 4-23 et 4-24. En se concentrant sur une fissure au niveau du plan de stratification (Figure 3-25), visible après la montée hydrostatique, on constate que la fissure perpendiculaire à l'axe de chargement se referme progressivement avec l'augmentation du déviateur. À 10 MPa de chargement déviatorique, la fissure est encore visible (Figure 4-26), mais à 20 MPa, elle devient difficilement discernable (Figure 4-27). Cette observation illustre que la compression triaxiale réduit les fissures existantes, diminuant ainsi la perméabilité au gaz de l'échantillon. Au cours de cet essai, la perméabilité du gaz a été réduite jusqu'à environ $1,06 \times 10^{-21}$ m², avec un déviateur de 20 MPa. Malheureusement, un problème technique a empêché la poursuite des paliers, nous privant ainsi de la visualisation de l'échantillon juste avant ou après la rupture. En ce qui concerne la quantification des

microfissures, nous n'avons pas réussi à le faire, principalement parce que l'essai a été réalisé avec une résolution de 24 μm , ce qui ne nous permet pas d'estimer le pourcentage de réduction suivant les différents paliers de chargement avec le logiciel VG Studio MAX. Il serait donc intéressant de mener ces essais sur un tomographe beaucoup plus puissant afin d'obtenir une résolution satisfaisante qui nous permettra de quantifier les microfissures et ainsi d'estimer la variation de la porosité pendant les chargements.

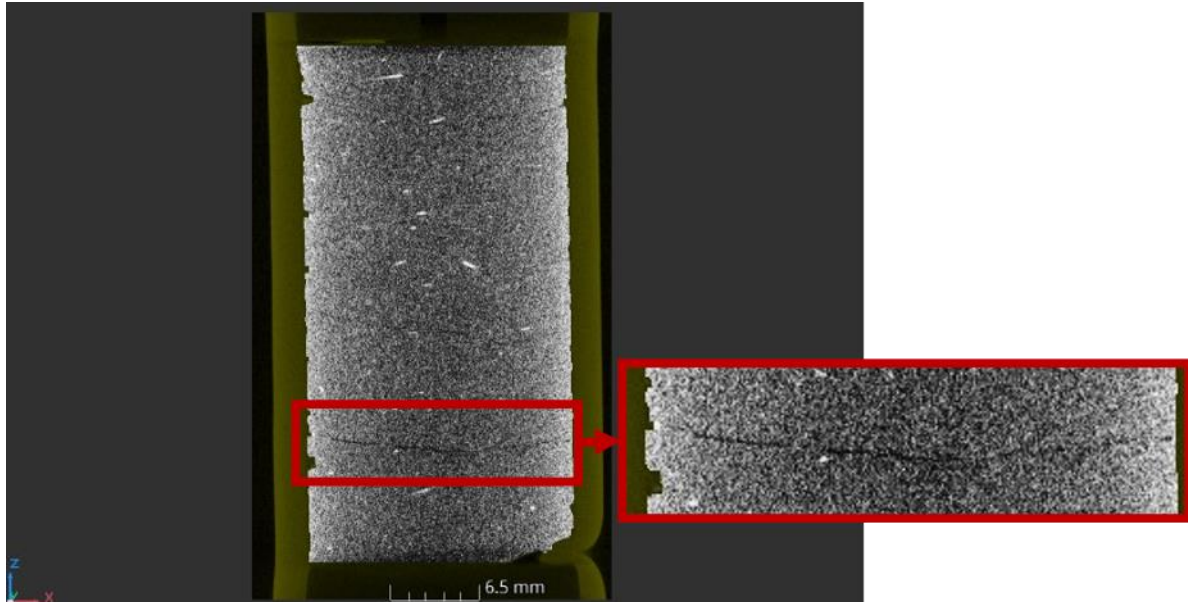


Figure 4-25 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST66697-11 juste après le chargement hydrostatique dans le plan 1-3 montrant une fissure suivant le plan de stratification.

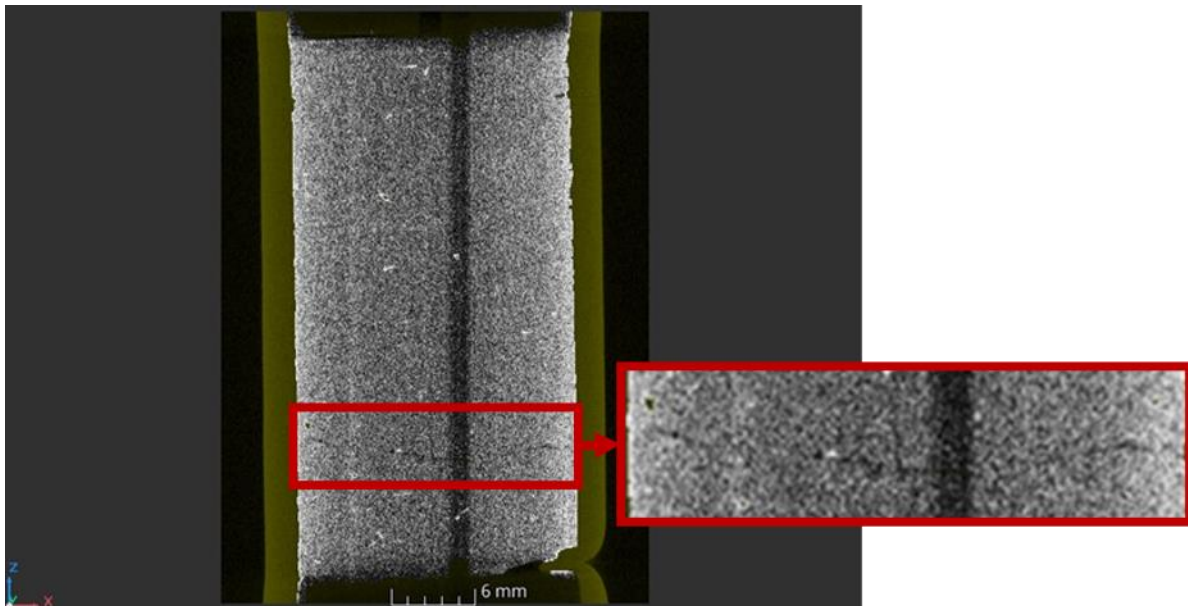


Figure 4-26 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST66697-11 juste après chargement déviatorique de 10 MPa dans le plan 1-3 montrant une fissure suivant le plan de stratification.

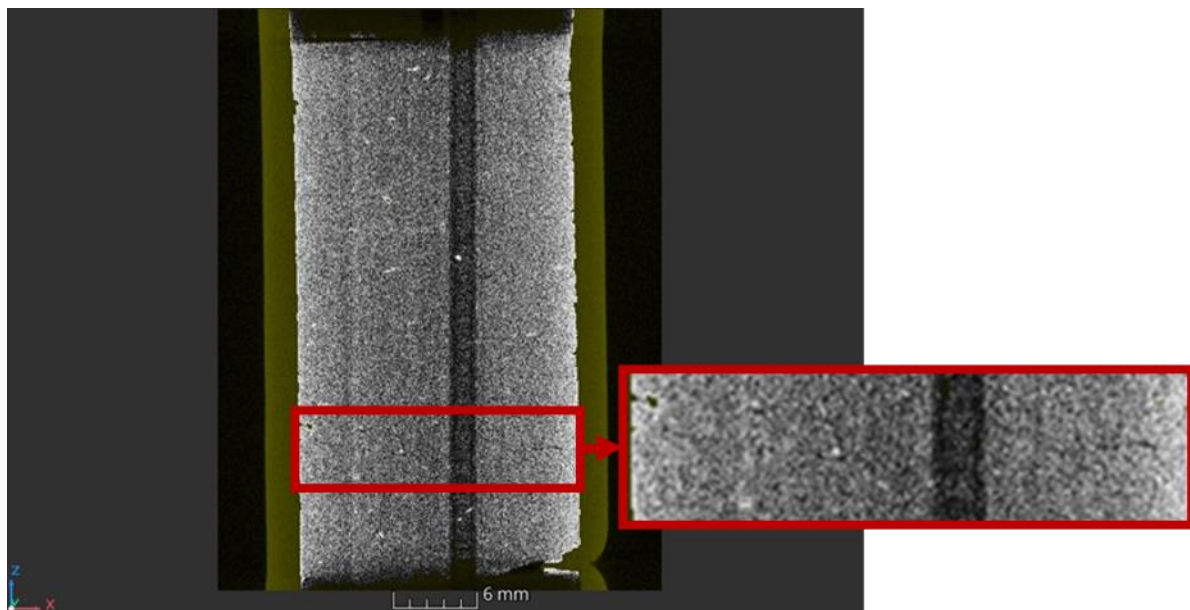


Figure 4-27 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST66697-11 juste après chargement déviatorique de 10 MPa dans le plan 1-3 montrant une fissure suivant le plan de stratification.

Lors de l'examen des scans au tomographe X effectués aux paliers de déviateur de 10 et 20 MPa avec injection de gaz, une observation notable est apparue après le traitement des données : un cylindre avec son axe parallèle à l'axe de l'échantillon, qui débute au niveau de l'extrémité amont (juste au-dessus de l'ouverture d'injection de gaz) et se termine à l'extrémité aval (Figure 4-28). Ce cylindre a un niveau de gris plus faible que l'échantillon et semble être constituée de COx désaturé par l'injection de gaz, représentant ainsi le chemin emprunté par le gaz à travers l'échantillon. En effet, le gaz injecté évacue l'eau contenue dans les pores grâce à la pression d'entrée et de percée. Pour confirmer ces premiers résultats, davantage d'essais avec injection de gaz sous tomographie seront nécessaires, car ce cylindre pourrait-être un ring artefact. Ces essais devront être effectués en utilisant des cales drainantes comme filtre afin de mieux diffuser l'injection de gaz et ainsi réduire ce phénomène d'injection localisée.

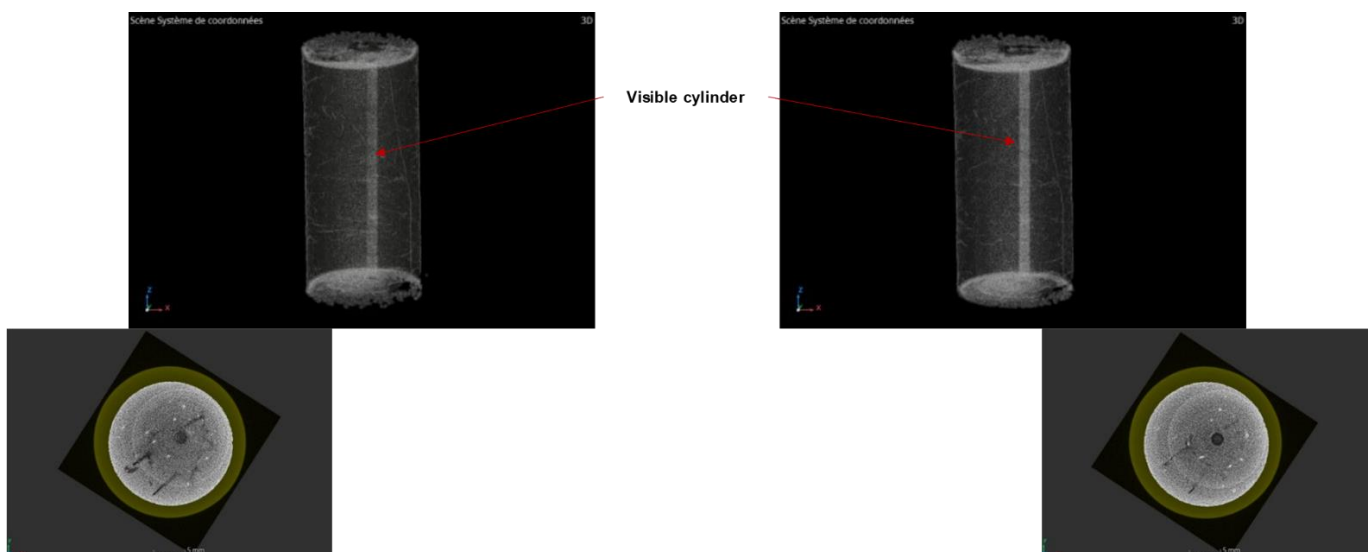


Figure 4-28 : Images de tomographie 3D aux rayons X de l'échantillon perpendiculaire EST66697-11 juste après chargement déviatorique de 10 MPa (à gauche) et 20MPa (à droite) dans la vue en 3D montrant la bande visible suivant l'axe de compression.

De manière générale, quelle que soit l'orientation (parallèle ou perpendiculaire au litage), une corrélation étroite entre l'évolution de la perméabilité au gaz et l'endommagement du matériau a été établie. Le seuil de dilatance représente le point d'inflexion à partir duquel l'ouverture des fissures induit une augmentation significative de la perméabilité au gaz. Cette augmentation est plus marquée lorsque la contrainte principale majeure est alignée avec les plans de litage, car les microfissures, principalement orientées parallèlement à cette contrainte, entraînent l'ouverture des plans de litage.

Conclusion

Ce chapitre a présenté une analyse de l'impact des fissures induites par l'endommagement sur la perméabilité au gaz de l'argilite du COx (roche hôte). Des essais de compression triaxiale ont été réalisés sur des échantillons orientés à la fois parallèlement et perpendiculairement au plan de stratification, avec des mesures de perméabilité par la méthode en régime permanent. Des jauges de déformation ont été utilisées et ont permis d'observer l'évolution des différentes déformations au cours des essais.

Nos résultats révèlent que la perméabilité initiale au gaz se situe autour de 10^{-20} m² pour l'orientation parallèle et d'environ 10^{-21} m² pour l'orientation perpendiculaire, à une pression de confinement totale de 12 MPa. Au début de l'essai de compression triaxiale, la perméabilité au gaz diminue initialement d'un ordre de grandeur pour les deux orientations, en raison de la fermeture des fissures initiales provoquée par la compression axiale des échantillons. Cette réduction de perméabilité s'accompagne d'une contraction de la déformation volumique. À mesure que la contrainte axiale augmente, le matériau commence progressivement à se dilater en raison de l'ouverture de microfissures orientées axialement. À partir du seuil de dilatation volumique jusqu'à la rupture macroscopique, une augmentation significative de la perméabilité au gaz est observée, résultant de l'ouverture importante de ces microfissures.

Il est clair qu'il existe une corrélation entre l'évolution de la perméabilité au gaz et l'endommagement du matériau. Le seuil de dilatation marque le point critique où l'ouverture des fissures entraîne une augmentation notable de la perméabilité au gaz. Cette augmentation est plus prononcée lorsque la contrainte principale est parallèle aux plans de litage, car les microfissures, principalement orientées dans cette direction, favorisent l'ouverture des plans de litage.

CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Ce travail de thèse a porté sur l'étude expérimentale de l'impact de la propagation et de l'auto-colmatage des fissures sur la perméabilité à l'eau et au gaz de l'argilite du Callovo-Oxfordien dans le contexte du stockage profond de déchets radioactifs. Plus précisément, l'impact de la température, de la teneur en calcite, de l'orientation des échantillons, de la largeur initiale des fissures et de l'injection de gaz sur le phénomène d'auto-colmatage de fissures artificielles dans des éprouvettes cylindriques d'argilite du COx a été étudié. Ensuite, l'incidence de l'endommagement par microfissuration sur la circulation du gaz à travers la roche hôte a également été caractérisé expérimentalement pour différentes orientations.

D'abord, une revue bibliographique offrant une vue d'ensemble des principaux aspects liés au stockage géologique profond et du concept de déchets radioactifs a été établie. Ensuite, le projet européen EURAD, dans lequel cette thèse s'inscrit a été présenté. Une attention particulière a ensuite été accordée aux propriétés générales des argiles, avec un accent sur l'argilite du Callovo-Oxfordien, une formation géologique largement étudiée en France (Bure, Meuse/Haute-Marne) dans le contexte d'un centre de stockage des déchets radioactifs et examinée dans cette thèse. Cela a permis d'enrichir nos connaissances sur sa composition minéralogique, son comportement thermo-hydro-mécanique et sa capacité à s'auto-colmater. De plus, la dynamique du stockage profond a été examinée, en abordant des facteurs clés tels que la température et les gaz, fournissant ainsi une base essentielle pour la compréhension des travaux de recherche présentés dans ce rapport de thèse. Par la suite, une revue des différents mécanismes de transfert des fluides a été proposée, mettant en évidence l'effet Klinkenberg, l'impact de la saturation, ainsi que les méthodes de détermination expérimentale qui ont fourni les outils nécessaires à l'établissement des protocoles expérimentaux. Le transfert au sein d'une phase a également été présenté, en portant une attention particulière à la pression d'entrée et à la pression de percée capillaire, avec un accent sur l'argilite du Callovo-Oxfordien. De ces analyses ont émergé des méthodes de détermination de ces différentes pressions, lesquelles ont été utilisées pour calibrer le protocole d'essai mis en œuvre dans le chapitre 4.

Le premier volet de notre étude s'est concentré sur le processus d'auto-colmatage de l'argilite du Callovo-Oxfordien. L'étude de ce processus, menée à travers des essais en cellules de compression triaxiale associés à des mesures de perméabilité, a dévoilé des conclusions significatives. L'utilisation d'une cellule triaxiale transparente aux rayons X et d'un dispositif expérimental sophistiqué a permis d'analyser de façon détaillée l'évolution du volume des fractures et de la perméabilité à l'eau et au gaz de carottes cylindriques d'argilite du COx, initialement fracturées artificiellement. La composition minéralogique s'est révélée être un facteur déterminant dans le processus d'auto-colmatage. Une teneur élevée en carbonate de calcium, correspondant à une faible teneur en argile, a été associée à une moindre efficacité de l'auto-colmatage, indépendamment de l'orientation de l'échantillon. Une teneur en carbonate inférieure à 40% s'est avérée nécessaire pour obtenir un auto-colmatage efficace. Ensuite, l'influence de l'orientation de l'échantillon sur le processus d'auto-colmatage n'a pas été clairement établie, ce mécanisme semblant être aussi efficace pour les orientations parallèles que perpendiculaires. De plus, l'ouverture initiale des fissures a eu un impact significatif sur la cinétique de l'auto-colmatage, avec une réduction plus rapide de la fracture pour des ouvertures initiales de 400 μm par rapport à 800 μm .

Par ailleurs, l'analyse de l'influence de la température sur des échantillons orientés parallèlement et perpendiculairement au litage a révélé un léger effet retard de la température la plus élevée (80 °C) sur la réduction de la perméabilité intrinsèque en tout début d'expérience, attribuable à la surpression transitoire de l'eau dans la fracture, qui écarte les lèvres de la fracture et augmente ainsi la perméabilité à l'eau. Par

ailleurs, compte tenu des incertitudes expérimentales, notamment dans la procédure de calcul du volume des fractures à partir des données voxel et de l'hétérogénéité des propriétés du matériau (la teneur en calcite surtout), l'influence de la température sur la vitesse de fermeture de la fracture n'est pas très évidente. Finalement, l'impact de la température sur le processus d'auto-colmatage est très relatif et ceci devrait être confirmé par d'autres campagnes d'essais similaires à des températures élevées, mais en l'état l'auto-colmatage reste un mécanisme très efficace quelle que soit la température.

Enfin, en ce qui concerne l'injection simultanée de gaz inerte et de l'eau, cette étude a mis en lumière un effet retard marqué sur la réduction de la perméabilité à l'eau, attribuable à la désaturation induite par le gaz. Malgré ce retard, le processus d'auto-colmatage s'est encore avéré efficace, montrant une réduction significative de la perméabilité et du volume de la fracture.

Dans l'ensemble, le processus d'auto-colmatage démarre rapidement avant de se stabiliser après environ un mois. Les résultats sont très prometteurs, suggérant que l'auto-colmatage est un mécanisme efficace, surtout lorsque la teneur en argile est élevée. Ces observations suscitent une confiance significative quant à l'impact positif de l'auto-colmatage sur la restauration des propriétés mécaniques et hydrauliques initiales de la roche argileuse hôte. Les investigations menées fournissent une compréhension approfondie des interactions complexes régissant l'auto-colmatage des fractures dans l'argilite du COx. Ces résultats revêtent une importance cruciale pour la modélisation géologique, notamment dans le contexte du stockage souterrain des déchets radioactifs. La connaissance approfondie des influences spécifiques de la composition minéralogique, de l'orientation, de la température et de l'injection de gaz sur le processus d'auto-colmatage contribue à l'amélioration des stratégies de confinement, participant ainsi à une gestion sûre et efficace des sites de stockage. Il convient de noter que la durée des essais est inférieure à l'échelle de temps *in situ*, soulignant ainsi le potentiel de ce mécanisme physico-chimique pour assurer un scellement efficace des fractures dans l'EDZ lors de la resaturation des structures souterraines destinées au stockage des déchets radioactifs dans les roches argileuses, ce qui garantit la sécurité du site.

Le second volet de nos travaux a été consacré à l'étude de la propagation des fissures sur la perméabilité au gaz du COx. Les résultats obtenus à partir des essais de compression triaxiale menés sur des échantillons d'argilite du COx ont fourni des informations précieuses sur l'impact des fissures résultant de l'endommagement sur la perméabilité au gaz dans deux orientations distinctes : parallèle et perpendiculaire au plan de litage. Ces résultats sont essentiels à la compréhension du comportement hydromécanique de cette roche argileuse, en particulier dans le contexte des sites de stockage souterrain de déchets radioactifs.

Les essais pilotes qui ont été réalisés afin d'étudier l'importance de l'état hydrique du matériaux, nous ont permis de comprendre qu'il est important de prêter attention à la procédure de resaturation des échantillons avant de les utiliser. Il en résulte qu'il est préférable de ne pas resaturer les éprouvettes de COx, quelle que soit la procédure (en cellule sous pression ou sous atmosphère humide), avant de déterminer la pression de percée de gaz et de réaliser l'essai mécanique. L'analyse des essais avec jauges de déformation révèle des différences dans la perméabilité au gaz entre les échantillons orientés parallèlement et perpendiculairement au plan de litage. Initialement, la perméabilité au gaz est sensiblement plus élevée dans les échantillons orientés parallèlement aux plans de litage. Ensuite, à mesure que la contrainte déviatorique augmente, la perméabilité au gaz diminue progressivement dans les deux orientations, témoignant de la fermeture des fissures induite par la compression axiale des échantillons. L'observation d'une augmentation significative de la perméabilité au gaz à proximité du seuil de dilatance, en particulier dans les échantillons orientés parallèlement au plan de litage. Cette ouverture anisotrope des fissures, principalement axiales, entraîne une augmentation de la perméabilité au gaz, de manière plus

significative pour l'échantillon parallèle pour lequel la contrainte principale est alignée avec les plans de litage. Ces résultats confirment la corrélation étroite entre l'évolution de la perméabilité au gaz et l'endommagement par microfissuration du matériau, et mettent en évidence l'importance de l'orientation des échantillons par rapport au plan de litage.

Ces résultats contribuent ainsi à une meilleure évaluation des performances de confinement des sites de stockage souterrain et à une gestion plus efficace des déchets radioactifs. Ils ouvrent également la voie à un éventail de perspectives qui pourraient être investiguées dans des recherches futures, enrichissant ainsi la compréhension du processus d'auto-colmatage et de la circulation du gaz dans les roches hôtes.

Afin d'approfondir les conclusions relatives à l'auto-colmatage, il paraît pertinent d'envisager des essais supplémentaires sur des échantillons présentant des orientations parallèles et perpendiculaires au litage, dans le but d'éclaircir l'influence de l'anisotropie sur ce processus. Il serait également nécessaire de mener une étude à plus long terme, bien au-delà des essais d'environ un mois déjà réalisés, pour mieux comprendre l'évolution et la stabilisation de l'auto-colmatage dans le temps. De plus, l'intégration d'une analyse par corrélation d'image sur les images de tomographie des essais existants offrirait une perspective complémentaire sur les champs cinématiques de fermeture. Par ailleurs, il serait particulièrement intéressant de mener des essais d'auto-colmatage sur des éprouvettes comportant des fractures « naturelles », générées mécaniquement (compression, traction indirecte, cisaillement) plutôt que par usinage. Cela permettrait d'obtenir des géométries de fractures plus réalistes, avec une rugosité accrue et une ouverture plus réduite, favorisant potentiellement un auto-colmatage plus efficace, avec un retour potentiel à des niveaux de perméabilité proches de ceux de la roche intacte. Une fois l'auto-colmatage effectué sur ces échantillons mécaniquement fracturés, l'évaluation des propriétés mécaniques post-colmatage serait également d'un grand intérêt. Par ailleurs, une attention particulière devrait être portée à la composition minéralogique des échantillons, notamment à la teneur en calcite, afin de garantir l'homogénéité des résultats et d'établir des comparaisons valides entre les différents essais. De plus, l'influence de la chimie de l'eau, susceptible d'affecter la vitesse de colmatage en raison des interactions entre les particules d'argile et l'eau injectée, ne devrait pas être négligée dans cette analyse approfondie.

Concernant la compression triaxiale avec injection de gaz, une démarche complémentaire consisterait à répéter les essais à plusieurs reprises afin de confirmer les résultats déjà obtenus. Il serait également intéressant de réaliser ces mêmes essais sous différentes températures afin d'analyser l'impact de la température sur l'endommagement par microfissuration et la perméabilité au gaz. L'intégration de mesures de déformation couplées à des représentations tridimensionnelles des pores et des fissures pendant les essais (par tomographie 3D aux rayons X) permettrait d'approfondir la compréhension des mécanismes de déformation et d'endommagement, offrant ainsi une interprétation plus précise de la circulation du gaz en fonction du degré de déformation. Cette approche permettrait également de mieux appréhender les interactions complexes entre les contraintes mécaniques, thermiques et physico-chimiques, offrant ainsi des perspectives prometteuses pour une modélisation plus précise du comportement hydromécanique des roches hôtes.

En résumé, ces perspectives de recherche offrent un terrain fertile pour explorer de nouveaux horizons dans le domaine du stockage géologique des déchets radioactifs, contribuant ainsi à une meilleure gestion et à une compréhension plus approfondie des mécanismes impliqués dans l'auto-colmatage des fissures et la circulation du gaz dans les roches hôtes.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Agboli, M., Grgic, D., Moumni, M. et Giraud, A. (2023). Study Under X-Ray Tomography of the Impact of Self-Sealing Process on the Permeability of the Callovo-Oxfordian Claystone. *Rock Mechanics and Rock Engineering*. <https://doi.org/10.1007/s00603-023-03350-y>
- Andra. (2005). *Dossier Argile 2005*.
- Andra. (2009). *Inventaire national*. www.andra.fr
- Andra. (2015, 22 octobre). *protocoles expérimentaux pour des essais sur l'argilite*.
- Andra. (2017). *Dossier argile*.
- Andra. (2023). *Les Essentiels*. <https://inventaire.andra.fr>
- Armand, G., Bumbieler, F., Conil, N., Vu, N., Talandier, J. et Seyedi, D. (2016). The Meuse\Haute-Marne underground research laboratory: Mechanical behavior of the Callovo-Oxfordian claystone (p. 593-633).
- Armand, G., Conil, N., Talandier, J. et Seyedi, D. M. (2017). Fundamental aspects of the hydromechanical behaviour of Callovo-Oxfordian claystone: From experimental studies to model calibration and validation. *Computers and Geotechnics*, 85, 277-286. <https://doi.org/10.1016/j.compgeo.2016.06.003>
- Armand, G., Leveau, F., Nussbaum, C., De La Vaissiere, R., Noiret, A., Jaeggi, D., Landrein, P. et Righini, C. (2014). Geometry and Properties of the Excavation-Induced Fractures at the Meuse/Haute-Marne URL Drifts. *Rock Mechanics and Rock Engineering*, 47(1), 21-41. <https://doi.org/10.1007/s00603-012-0339-6>
- Armand, G., Noiret, A., Zghondi, J. et Seyedi, D. M. (2013). Short- and long-term behaviors of drifts in the Callovo-Oxfordian claystone at the Meuse/Haute-Marne Underground Research Laboratory. *Journal of Rock Mechanics and Geotechnical Engineering*, 5(3), 221-230. <https://doi.org/10.1016/j.jrmge.2013.05.005>
- Auvray, C., Grgic, D., Morlot, C., Fourreau, E. et Talandier, J. (2015). X-Ray Tomography Applied to Self-Healing Experiments on Argillites. 13th ISRM International Congress of Rock Mechanics, OnePetro.
- Bastiaens, W., Bernier, F. et Li, X. L. (2007). SELFRAC: Experiments and conclusions on fracturing, self-healing and self-sealing processes in clays. *Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C*, 32(8-14), 600-615. <https://doi.org/10.1016/j.pce.2006.04.026>
- Bauer, C. (1997). *Propriété thermo-mécanique des argilites silto-carbonatées de l'EST* (Rapport G).
- Bemer, E., Longuemare, P. et Vincké, O. (2004). Poroelastic parameters of Meuse/Haute Marne argillites: Effect of loading and saturation states. *Applied Clay Science - APPL CLAY SCI*, 26, 359-366. <https://doi.org/10.1016/j.clay.2003.12.012>
- Bergaya, F., Theng, B. K. G. et Lagaly, G. (2006). *Handbook of Clay Science, Volume 1 - 1st Edition*.
- Besnus, F. (1991). *Contribution à l'étude de l'influence des gaz générés par les déchets radioactifs sur la sûreté des stockages en formations géologiques profondes*.

- Bésuelle, P. et Hall, S. A. (2011). Characterization of the Strain Localization in a Porous Rock in Plane Strain Condition Using a New True-Triaxial Apparatus. Dans S. Bonelli, C. Dascalu et F. Nicot (dir.), *Advances in Bifurcation and Degradation in Geomaterials* (p. 345-352). Springer Netherlands. https://doi.org/10.1007/978-94-007-1421-2_46
- Bésuelle, P. et Lanata, P. (2014). Characterization of the early strain localization in a sandstone and a clay rock. 10th International Workshop on Bifurcation and Degradation in Geomaterials - IWBDG 2014. <https://hal.univ-grenoble-alpes.fr/hal-01965805>
- Blaise, T., Barbarand, J., Kars, M., Ploquin, F., Aubourg, C., Brigaud, B., Cathelineau, M., El Albani, A., Gautheron, C., IZART, A., Janots, D., Michels, R., Pagel, M., Pozzi, J.-P., Boiron, M.-C. et Landrein, P. (2014). Reconstruction of low temperature (< 100 °C) burial in sedimentary basins: A comparison of geothermometer in the intracontinental Paris Basin. *Marine and Petroleum Geology*, 53, 71-87. <https://doi.org/10.1016/j.marpetgeo.2013.08.019>
- Bock, H., Dehandschutter, B., Martin, C., Mazurek, M., Haller, A., Skoczylas, F. et Davy, C. (2010). Self-sealing of Fractures in Argillaceous Formations in the Context of Geological Disposal of Radioactive Waste. <https://www.semanticscholar.org/paper/Self-sealing-of-Fractures-in-Argillaceous-in-the-of-Bock-Dehandschutter/f9de88cbbd714dc7e9df513d57db28d53dee60ef>
- Bornert, M., Vales, F., Gharbi, H. et Minh, D. (2010). Multiscale Full-Field Strain Measurements for Micromechanical Investigations of the Hydromechanical Behaviour of Clayey Rocks. *Strain*, 46. <https://doi.org/10.1111/j.1475-1305.2008.00590.x>
- Boulin, P. (2008). *Expérimentation et Modélisation du Transfert d'hydrogène à travers des argiles de centre de stockage de déchets radioactifs* [PhD Thesis, Institut National Polytechnique de Grenoble - INPG]. <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00331826>
- Boulin, P., Angulo-Jaramillo, R., Talandier, J. et Daian, J. (2012a). Contribution of the Dusty Gas Model to Permeability/Diffusion Tests on Partially Saturated Clay Rocks. *Transport in Porous Media*, 93. <https://doi.org/10.1007/s11242-012-9972-5>
- Boulin, P. F., Bretonnier, P., Gland, N. et Lombard, J. M. (2012b). Contribution of the Steady State Method to Water Permeability Measurement in Very Low Permeability Porous Media. *Oil & Gas Science and Technology – Revue d'IFP Energies nouvelles*, 67(3), 387-401. <https://doi.org/10.2516/ogst/2011169>
- Boulin, P. F., Bretonnier, P., Vassil, V., Samouillet, A., Fleury, M. et Lombard, J.-M. (2011). ENTRY PRESSURE MEASUREMENTS USING THREE UNCONVENTIONAL EXPERIMENTAL METHODS. International Symposium of the Society of Core Analysts. <https://www.semanticscholar.org/paper/ENTRY-PRESSURE-MEASUREMENTS-USING-THREE-METHODS-Vassil-Samouillet/ad110f1700a1e17b35cb3dd493c6b05a5e5e731a>
- Brace, W. F., Walsh, J. B. et Frangos, W. T. (1968). Permeability of granite under high pressure. *Journal of Geophysical Research* (1896-1977), 73(6), 2225-2236. <https://doi.org/10.1029/JB073i006p02225>
- Cariou, S., Duan, Z., Davy, C., Skoczylas, F. et Dormieux, L. (2012). Poromechanics of partially saturated CO_x argillite. *Applied Clay Science*, 56, 36-47. <https://doi.org/10.1016/j.clay.2011.11.021>
- Carles, P., Bachaud, P., Lasseur, E., Berne, P. et Bretonnier, P. (2010). Confining Properties of Carbonated Dogger Caprocks (Parisian Basin) for CO₂ Storage Purpose. *Oil & Gas Science and Technology*, 65. <https://doi.org/10.2516/ogst/2009082>
- Chen, G., Maes, T., Vandervoort, F., Sillen, X., Marcke, P., Honty, M., Dierick, M. et Vanderniepen, P. (2013). Thermal Impact on Damaged Boom Clay and Opalinus Clay: Permeameter and Isostatic Tests with μ CT Scanning. *Rock Mechanics and Rock Engineering*, 47.

<https://doi.org/10.1007/s00603-012-0334-y>

- Chen, J., Hopmans, J. W. et Grismer, M. E. (1999). Parameter estimation of two-fluid capillary pressure–saturation and permeability functions. *Advances in Water Resources*, 22(5), 479-493. [https://doi.org/10.1016/S0309-1708\(98\)00025-6](https://doi.org/10.1016/S0309-1708(98)00025-6)
- Chiarelli, A. (2000). Etude expérimentale et modélisation du comportement mécanique de l'argilité de l'Est : influence de la profondeur et de la teneur en eau. <https://www.semanticscholar.org/paper/Etude-exp%C3%A9rimentale-et-mod%C3%A9lisation-du-comportement-Chiarelli/5a21fbb058d2269b87e122f53c155d9d61914442>
- Chiarelli, A. S., Shao, J. F. et Hoteit, N. (2003). Modeling of elastoplastic damage behavior of a claystone. *International Journal of Plasticity*, 19(1), 23-45. [https://doi.org/10.1016/S0749-6419\(01\)00017-1](https://doi.org/10.1016/S0749-6419(01)00017-1)
- Coll, C. (2005). *Endommagement des roches argileuses et perméabilité induite au voisinage d'ouvrages souterrains* [PhD Thesis, Université Joseph-Fourier - Grenoble I].
- Conil, N., Talandier, J., Djizanne, H., de La Vaissière, R., Righini-Waz, C., Auvray, C., Morlot, C. et Armand, G. (2018). How rock samples can be representative of in situ condition: A case study of Callovo-Oxfordian claystones. *Journal of Rock Mechanics and Geotechnical Engineering*, 10. <https://doi.org/10.1016/j.jrmge.2018.02.004>
- Coussy, O. (1991). *Mécanique des milieux poreux*. Editions TECHNIP.
- Cuevas, J., Villar, M., Martín, M., Cobeña, C. et Leguey, S. (2002). Thermo-hydraulic gradients on bentonite: Distribution of soluble salts, microstructure and modification of the hydraulic and mechanical behaviour. *Applied Clay Science - APPL CLAY SCI*, 22, 25-38. [https://doi.org/10.1016/S0169-1317\(02\)00109-6](https://doi.org/10.1016/S0169-1317(02)00109-6)
- Dana, E. et Skoczylas, F. (1999). Gas relative permeability and pore structure of sandstones. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences*, 36(5), 613-625. [https://doi.org/10.1016/S0148-9062\(99\)00037-6](https://doi.org/10.1016/S0148-9062(99)00037-6)
- Dana, E. et Skoczylas, F. (2002). Experimental study of two-phase flow in three sandstones. I. Measuring relative permeability during two-phase steady-state experiments. *International Journal of Multiphase Flow*, 28, 1719-1736. [https://doi.org/10.1016/S0301-9322\(02\)00090-3](https://doi.org/10.1016/S0301-9322(02)00090-3)
- Davy, C. A., Skoczylas, F., Barnichon, J.-D. et Lebon, P. (2007). Permeability of macro-cracked argillite under confinement: Gas and water testing. *Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C*, 32(8), 667-680. <https://doi.org/10.1016/j.pce.2006.02.055>
- De La Vaissière, R., Armand, G. et Talandier, J. (2015). 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*, 521, 141-156. <https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2014.11.067>
- De Marsily, G. (1986, 1^{er} janvier). *Quantitative hydrogeology*. Academic Press, Inc., Orlando, FL. <https://www.osti.gov/biblio/6784827>
- Delage, P., Menaceur, H., Tang, A. M. et Talandier, J. (2014). Suction effects in deep Callovo-Oxfordian claystone. *Géotechnique Letters*, 4(4), 267-271. <https://doi.org/10.1680/geolett.14.00062>
- Delage, P., Sultan, N. et Cui, Y.-J. (2012). On The Thermal Consolidation Of Boom Clay. *Canadian Geotechnical Journal - CAN GEOTECH J*, 37. <https://doi.org/10.1139/cgj-37-2-343>
- Delay, J., Rebours, H., Vinsot, A. et Robin, P. (2007). Scientific investigation in deep wells for nuclear waste disposal studies at the Meuse/Haute Marne underground research laboratory, Northeastern France. *Physics and Chemistry of The Earth - PHYS CHEM EARTH*, 32, 42-57.

<https://doi.org/10.1016/j.pce.2005.11.004>

- Desbois, G., Höhne, N., Urai, J., Bésuelle, P. et Viggiani, G. (2017). Deformation in cemented mudrock (Callovo-Oxfordian Clay) by microcracking, granular flow and phyllosilicate plasticity: Insights from triaxial deformation, broad ion beam polishing and scanning electron microscopy. *Solid Earth*, 8, 291-305. <https://doi.org/10.5194/se-8-291-2017>
- Di Donna, A., Charrier, P., Dijkstra, J., Andò, E. et Bésuelle, P. (2022). The contribution of swelling to self-sealing of claystone studied through x-ray tomography. *Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C*, 127, 103191. <https://doi.org/10.1016/j.pce.2022.103191>
- Didier, M. (2012). *Etude du transfert réactif de l'hydrogène au sein de l'argilite intacte* [These de doctorat, Grenoble]. <https://www.theses.fr/2012GRENU018>
- Dridi, W. (2005). *Couplage entre corrosion et comportement diphasique dans un milieu poreux : Application à l'évolution d'un stockage des déchets radioactifs* [These de doctorat, Marne-la-vallée, ENPC]. <https://www.theses.fr/2005ENPC0009>
- Egermann, P., Lombard, J.-M. et Bretonnier, P. (2006). A fast and accurate method to measure threshold capillary pressure of caprocks under representative conditions.
- Egloffstein, T. A. (2001). Natural bentonites—influence of the ion exchange and partial desiccation on permeability and self-healing capacity of bentonites used in GCLs. *Geotextiles and Geomembranes*, 19(7), 427-444. [https://doi.org/10.1016/S0266-1144\(01\)00017-6](https://doi.org/10.1016/S0266-1144(01)00017-6)
- Escoffier, S. (2002). *Caractérisation expérimentale du comportement hydromécanique des argilites de Meuse/Haute-Marne* [PhD Thesis, Institut National Polytechnique de Lorraine].
- Gallé, C. (2000). Gas breakthrough pressure in compacted Fo–Ca clay and interfacial gas overpressure in waste disposal context. *Applied Clay Science*, 17(1), 85-97. [https://doi.org/10.1016/S0169-1317\(00\)00007-7](https://doi.org/10.1016/S0169-1317(00)00007-7)
- Gasc-Barbier, M., Chanchole, S. et Bérest, P. (2004). Creep behavior of Bure clayey rock. *Applied Clay Science*, 26(1), 449-458. <https://doi.org/10.1016/j.clay.2003.12.030>
- Gatmiri, B. (2011). *Synthèse générale du programme 2007–2011 du groupement de laboratoire géomécanique* [Tech Report (in french) ANDRA].
- Gaucher, E., Robelin, C., Matray, J. M., Négrel, G., Gros, Y., Heitz, J. F., Vinsot, A., Rebours, H., Cassagnabère, A. et Bouchet, A. (2004). Andra underground research laboratory: interpretation of the mineralogical and geochemical data acquired in the Callovian–Oxfordian formation by investigative drilling. *Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C*, 29(1), 55-77. <https://doi.org/10.1016/j.pce.2003.11.006>
- Gbewade, C., Grgic, D., Giraud, A. et Schoumacker, L. (2023). Experimental Study of the Effect of Temperature on the Mechanical Properties of the Callovo-Oxfordian Claystone. *Rock Mechanics and Rock Engineering*, 1-22. <https://doi.org/10.1007/s00603-023-03630-7>
- Gérard-Marchant, P. (1998). *Caractérisation hydro-dynamique des transferts d'eau en conditions non saturées dans un milieu déformable à faible perméabilité : application aux matériaux de centre de stockage de déchets* [These de doctorat, Université Joseph Fourier (Grenoble ; 1971-2015)]. <https://www.theses.fr/1998GRE10155>
- Giannesini, S. (2006). *Géochimie isotopique couplée des eaux des formations argileuses et calcaires du site Andra de Meuse/Haute-Marne* [These de doctorat, Aix-Marseille 3]. <https://www.theses.fr/2006AIX30023>

- Giot, R., Auvray, C. et Talandier, J. (2019). Self-sealing of claystone under X-ray nanotomography. *Geological Society, London, Special Publications*, 482(1), 213-223. <https://doi.org/10.1144/SP482.4>
- Grgic, D., Giraud, A. et Schoumacker, L. (2019). Dynamic anisotropic elastic properties of a claystone under variable loading direction and saturation. *Geophysical Journal International*, 216(1), 148-163.
- Grgic, D., Homand, F. et Giraud, A. (2006). Modelling of the drying and flooding of underground iron mines in Lorraine (France). *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences*, 43, 388-407. <https://doi.org/10.1016/j.ijrmms.2005.07.004>
- Grgic, D., Moumni, M., Giraud, A., de La Vaissière, R. et Talandier, J. (2023). Water Permeability Measurements by Steady-State and Pulse Decay Methods on the Callovo-Oxfordian Claystone and Impact on its Mechanical Properties. *Rock Mechanics and Rock Engineering*, 1-20. <https://doi.org/10.1007/s00603-023-03340-0>
- Guéry, A., Cormery, F., Shao, J. et Kondo, D. (2008). A micromechanical model of elastoplastic and damage behavior of a cohesive geomaterial. *International Journal of Solids and Structures - INT J SOLIDS STRUCT*, 45, 1406-1429. <https://doi.org/10.1016/j.ijsolstr.2007.09.025>
- Harrington, J., Cuss, R. et Talandier, J. (2017). Gas transport properties through intact and fractured Callovo-Oxfordian mudstones. *Geological Society, London, Special Publications*, 454, SP454.7. <https://doi.org/10.1144/SP454.7>
- Harrington, J., de La Vaissière, R., Noy, D., Cuss, R. et Talandier, J. (2012). Gas flow in Callovo-Oxfordian claystone (COX): Results from laboratory and field-scale measurements. *Mineralogical Magazine*, 76, 3303-3318. <https://doi.org/10.1180/minmag.2012.076.8.43>
- Harrington, J. F. et Horseman, S. T. (2003). *Gas migration in KBS-3 buffer bentonite Sensitivity of test parameters to experimental boundary conditions* (1404-0344).
- Heitz, J. F. (1997). *caractérisation mécanique spécifique des argilites de l'oxfordien inférieur* (Rapport ANTEA).
- Heitz, J. F. (1998). *lien entre les sollicitations thermiques et mecaniques et la permeabilité dans les argilites de l'Est* [Rapport ANTEA BRP 0ANT 98-053/A].
- Heitz, J. F. (1999). *Site de Meuse/Haute- Marne, argilites du Callovo-Oxfordien, détermination en laboratoire de coefficients poromécaniques et calculs poromécaniques 2D d'ouvrages souterraines de stockage*. [Rapport ANTEA BRP 0ANT 99-072/A].
- Heitz, J. F. et Hicher, P.-Y. (2002). The mechanical behaviour of argillaceous rocks – Some questions from laboratory experiments. Dans *Hydromechanical and Thermohydromechanical Behaviour of Deep Argillaceous Rock* (p. 99-108).
- Hejtmánek, V., Šolcová, O. et Schneider, P. (2003). Gas permeation in porous solids: Two measurement modes. *Chemical Engineering Communications*, 190(1), 48-64. <https://doi.org/10.1080/00986440302092>
- Hildenbrand, A. (2003). *Fluid Transport Processes in Mudstones*.
- Hildenbrand, A., Schlomer, S. et Krooss, B. M. (2002). Gas breakthrough experiments on fine-grained sedimentary rocks. *Geofluids*, 2(1), 3-23. <https://doi.org/10.1046/j.1468-8123.2002.00031.x>
- Hoek, E. et Brown, E. T. (1980). *Underground Excavations in Rock*. CRC Press.

- Homand, F. (1997). *Caractérisation de l'endommagement sous différents chemin de contraintes* (Rapport LAEGO).
- Homand, F. (2000). *Essais géomécaniques sondage EST204 et EST205* [Rapport LAEGO].
- Homand, F., Giraud, A., Escoffier, S., Koriche, A. et Hoxha, D. (2004). Permeability determination of a deep argillite in saturated and partially saturated conditions. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 47(14), 3517-3531. <https://doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2004.02.012>
- Homand, F., Shao, J.-F., Giraud, A., Auvray, C. et Hoxha, D. (2006). Péetrofabrique et propriétés mécaniques des argilites. *Comptes Rendus Geoscience*, 338(12), 882-891. <https://doi.org/10.1016/j.crte.2006.03.009>
- Hoxha, D., Giraud, A., Blaisonneau, A., Homand, F. et Chavant, C. (2004). Poroplastic modelling of the excavation and ventilation of a deep cavity. *International Journal for Numerical and Analytical Methods in Geomechanics*, 28(4), 339-364. <https://doi.org/10.1002/nag.346>
- Hsieh, P. A., Tracy, J. V., Neuzil, C. E., Bredehoeft, J. D. et Silliman, S. E. (1981). A transient laboratory method for determining the hydraulic properties of 'tight' rocks—I. Theory. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences & Geomechanics Abstracts*, 18(3), 245-252. [https://doi.org/10.1016/0148-9062\(81\)90979-7](https://doi.org/10.1016/0148-9062(81)90979-7)
- Hu, D., Zhang, F., Shao, J. et Gatmiri, B. (2013). Influences of Mineralogy and Water Content on the Mechanical Properties of Argillite. *Rock Mechanics and Rock Engineering*, 47. <https://doi.org/10.1007/s00603-013-0413-8>
- Jacops, E., Volckaert, G., Maes, N., Weetjens, E., Maes, T. et Vandervoort, F. (2012). A method for the determination of gas diffusion coefficients in undisturbed boom clay. From clays in natural and engineered barriers for radioactive waste confinement. *V International Meeting*, 529-530.
- Kedziorek, M., Bourg, A. et Giffaut, E. (2007). Hydrogeochemistry of Sn(IV) in the context of radioactive waste disposal: Solubility and adsorption on MX80 bentonite and Callovo-Oxfordian argillite. *Physics and Chemistry of The Earth - PHYS CHEM EARTH*, 32, 568-572. <https://doi.org/10.1016/j.pce.2005.12.005>
- Klinkenberg, L. J. (1941). The Permeability Of Porous Media To Liquids And Gases. *Drilling and Production Practice*, 200-213.
- Krishna, R. et Wesselingh, J. A. (1997). The Maxwell-Stefan approach to mass transfer. *Chemical Engineering Science*, 52(6), 861-911.
- Landais, P. (2006). Advances in geochemical research for the underground disposal of high-level, long-lived radioactive waste in a clay formation. *Journal of Geochemical Exploration*, 88, 32-36. <https://doi.org/10.1016/j.gexplo.2005.08.011>
- Li, S., DONG, M., li, Z., Huang, S., QING, H. et NICKEL, E. (2005). Gas breakthrough pressure for hydrocarbon reservoir seal rocks: Implications for the security of long-term CO₂ storage in the Weyburn field. *Geofluids*, 5, 326-334. <https://doi.org/10.1111/j.1468-8123.2005.00125.x>
- Lin, ling-chu et Benson, C. (2000). Effect of Wet-Dry Cycling on Swelling and Hydraulic Conductivity of GCLs. *Journal of Geotechnical and Geoenvironmental Engineering - J GEOTECH GEOENVIRON ENG*, 126, 40-49. [https://doi.org/10.1061/\(ASCE\)1090-0241\(2000\)126:1\(40\)](https://doi.org/10.1061/(ASCE)1090-0241(2000)126:1(40))
- Liu, Z. B., Xie, S. Y., Shao, J. F. et Conil, N. (2015). Effects of deviatoric stress and structural anisotropy on compressive creep behavior of a clayey rock. *Applied Clay Science*, 114, 491-496. <https://doi.org/10.1016/j.clay.2015.06.039>

- Liu, Z., Shao, J., Xie, S., Conil, N. et Zha, W. (2018). Effects of relative humidity and mineral compositions on creep deformation and failure of a claystone under compression. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences*, 103, 68-76. <https://doi.org/10.1016/j.ijrmms.2018.01.015>
- Liu, Z., Shao, J., XIE, S. Y., Conil, N. et Talandier, J. (2019). Mechanical Behavior of Claystone in Lateral Decompression Test and Thermal Effect. *Rock Mechanics and Rock Engineering*, 52. <https://doi.org/10.1007/s00603-018-1573-3>
- Marschall, P., Horseman, S. et Gimmi, T. (2005). Characterisation of Gas Transport Properties of the Opalinus Clay, a Potential Host Rock Formation for Radioactive Waste Disposal. *Oil & Gas Science and Technology*, 60(1), 121-139. <https://doi.org/10.2516/ogst:2005008>
- Masri, M., Malek, S., Shao, J. et Mainguy, M. (2014). Experimental investigation of the effect of temperature on the mechanical behavior of Tournemire shale. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences*, 70, 185-191. <https://doi.org/10.1016/j.ijrmms.2014.05.007>
- Mata Mena, C., Guimarães, L., Ledesma, A., Gens, A. et Olivella, S. (2005). A hydro-geochemical analysis of the saturation process with salt water of a bentonite crushed granite rock mixture in an engineered nuclear barrier. *Engineering Geology*, 81, 227-245. <https://doi.org/10.1016/j.enggeo.2005.06.018>
- Meyn. (1999). Die Bedeutung des Sperrdrucks (threshold pressure) für den Fluidtransport in neidrigstpermeablen Gesteinen: Experimentelle und theoretische Aspekte, (p. 255-264). DGMK Spring Conference.
- M'Jahad, S. (2012). *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* [phdthesis, Ecole Centrale de Lille]. <https://theses.hal.science/tel-00803248>
- Mohajerani, M. (2011). *Etude expérimentale du comportement thermo-hydro-mécanique de l'argilite du Callovo-Oxfordien* [PhD Thesis, Université Paris-Est].
- Mohajerani, M., Delage, P., Sulem, J., Monfared, M., Tang, A. M. et Gatmiri, B. (2012). A laboratory investigation of thermally induced pore pressures in the Callovo-Oxfordian claystone. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences*, 52, 112-121. <https://doi.org/10.1016/j.ijrmms.2012.02.012>
- Mohajerani, M., Delage, P., Sulem, J., Monfared, M., Tang, A.-M. et Gatmiri, B. (2013). The Thermal Volume Changes of the Callovo–Oxfordian Claystone. *Rock Mechanics and Rock Engineering*, 47. <https://doi.org/10.1007/s00603-013-0369-8>
- Monfared, M., Sulem, J., Delage, P. et Mohajerani, M. (2012). On the THM behaviour of a sheared Boom clay sample: Application to the behaviour and sealing properties of the EDZ. *Engineering Geology*, 124, 47-58. <https://doi.org/10.1016/j.enggeo.2011.10.002>
- Montes, H. G., Duplay, J., Martinez, L., Escoffier, S. et Rousset, D. (2004). Structural modifications of Callovo-Oxfordian argillite under hydration/dehydration conditions. *Applied Clay Science*, 25(3), 187-194. <https://doi.org/10.1016/j.clay.2003.10.004>
- Montes-Hernandez, G., Marty, N., Fritz, B., Clement, A. et Michau, N. (2005). Modelling of long-term diffusion–reaction in a bentonite barrier for radioactive waste confinement. *Applied Clay Science*, 30, 181-198. <https://doi.org/10.1016/j.clay.2005.07.006>
- Morgenstern, N. R. et Eigenbrod, K. D. (1974). Classification of Argillaceous Soils and Rocks. *Journal of the Geotechnical Engineering Division*, 100(10), 1137-1156. <https://doi.org/10.1061/AJGEB6.0000106>

- Pellenard, P., Tramoy, R., Pucéat, E., Huret, E., Martinez, M., Bruneau, L. et Thierry, J. (2014). Carbon cycle and sea-water palaeotemperature evolution at the Middle–Late Jurassic transition, eastern Paris Basin (France). *Marine and Petroleum Geology*, 53, 30-43. <https://doi.org/10.1016/j.marpetgeo.2013.07.002>
- Pham, Q., Vales, F., Malinsky, L., Minh, D. et Gharbi, H. (2007). Effects of desaturation–resaturation on mudstone. *Physics and Chemistry of The Earth - PHYS CHEM EARTH*, 32, 646-655. <https://doi.org/10.1016/j.pce.2006.03.012>
- Present, R. D. (1958). *Kinetic theory of gases*. McGraw-Hill.
- Pusch, R. (1993). *Mechanisms and consequences of creep in crystalline rock*, *Comprehensive rock engineering*. Vol. 1, ed J.A. Hudson, (Pergamon), 1993, pp 227–241. [https://doi.org/10.1016/0148-9062\(94\)90594-0](https://doi.org/10.1016/0148-9062(94)90594-0)
- Renner, J., Hettkamp, T. et Rummel, F. (2000). Rock Mechanical Characterization of an Argillaceous Host Rock of a Potential Radioactive Waste Repository. *Rock Mechanics and Rock Engineering*, 33, 153-178. <https://doi.org/10.1007/s006030070005>
- Revil, A. et Glover, P. W. J. (1998). Nature of surface electrical conductivity in natural sands, sandstones, and clays. *Geophysical Research Letters*, 25(5), 691-694. <https://doi.org/10.1029/98GL00296>
- Robinet, J.-C. (2008). *Minéralogie, porosité et diffusion des solutés dans l'argilite du Callovo-Oxfordien de Bure (Meuse, Haute-Marne, France) de l'échelle centimétrique à micrométrique* [These de doctorat, Poitiers]. <https://www.theses.fr/2008POIT2302>
- Robinet, J.-C., Sardini, P., Coelho, D., Parneix, J.-C., Prêt, D., Sammartino, S., Boller, E. et Altmann, S. (2012). Effects of mineral distribution at mesoscopic scale on solute diffusion in a clay-rich rock: Example of the Callovo-Oxfordian mudstone (Bure, France). *Water Resources Research*, 48(5). <https://doi.org/10.1029/2011WR011352>
- Robinet, J.-C., Sardini, P., Siitari-Kauppi, M., Prêt, D. et Yven, B. (2015). Upscaling the porosity of the Callovo-Oxfordian mudstone from the pore scale to the formation scale; insights from the 3H-PMMA autoradiography technique and SEM BSE imaging. *Sedimentary Geology*, 321, 1-10. <https://doi.org/10.1016/j.sedgeo.2015.02.007>
- Rudd, N. et Pandey, G. N. (1973). Threshold Pressure Profiling by Continuous Injection. Fall Meeting of the Society of Petroleum Engineers of AIME, OnePetro. <https://doi.org/10.2118/4597-MS>
- Salles, F., Douillard, J.-M., Denoyel, R., Bildstein, O., Jullien, M., Beurroies, I. et Van Damme, H. (2009). Hydration sequence of swelling clays: Evolutions of specific surface area and hydration energy. *Journal of Colloid and Interface Science*, 333(2), 510-522. <https://doi.org/10.1016/j.jcis.2009.02.018>
- Sammartino, S., Bouchet, A., Prêt, D., Parneix, J.-C. et Tevissen, E. (2003). Spatial distribution of porosity and minerals in clay rocks from the Callovo-Oxfordian formation (Meuse/Haute-Marne, Eastern France)—implications on ionic species diffusion and rock sorption capability. *Applied Clay Science*, 23(1), 157-166. [https://doi.org/10.1016/S0169-1317\(03\)00098-X](https://doi.org/10.1016/S0169-1317(03)00098-X)
- Sanchez, T. (2018). *Etude comparative de la diffusion d'espèces anioniques et cationiques dans les matériaux cimentaires : étude expérimentale et numérique*.
- Sarout, J., Molez, L., Guéguen, Y. et Hoteit, N. (2007). Shale dynamic properties and anisotropy under triaxial loading: Experimental and theoretical investigations. *Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C*, 32(8), 896-906. <https://doi.org/10.1016/j.pce.2006.01.007>
- Shackelford, C. D. (1991). Laboratory diffusion testing for waste disposal — A review. *Journal of*

- Contaminant Hydrology*, 7, 177-217. [https://doi.org/10.1016/0169-7722\(91\)90028-Y](https://doi.org/10.1016/0169-7722(91)90028-Y)
- Shao, J. F., Ata, N. et Ozanam, O. (2005). Study of desaturation and resaturation in brittle rock with anisotropic damage. *Engineering Geology*, 81(3), 341-352. <https://doi.org/10.1016/j.enggeo.2005.06.015>
- Shi, H., Hosdez, J., Rougelot, T., Xie, S., Shao, J., Talandier, J. et Lacidogna, G. (2020). Digital Volume Correlation Applied to X-ray Micro-Tomography Images in Uniaxial Creep Tests on Anisotropic Clayey Rock. *Applied Sciences*, 10(14), 4898. <https://doi.org/10.3390/app10144898>
- Song, Y., Davy, C. A., Bertier, P., Skoczylas, F. et Talandier, J. (2017). On the porosity of COx claystone by gas injection. *Microporous and Mesoporous Materials*, 239, 272-286. <https://doi.org/10.1016/j.micromeso.2016.10.017>
- Song, Y., Davy, C. A., Troadec, D., Blanchenet, A.-M., Skoczylas, F., Talandier, J. et Robinet, J. C. (2015). Multi-scale pore structure of COx claystone: Towards the prediction of fluid transport. *Marine and Petroleum Geology*, 65, 63-82. <https://doi.org/10.1016/j.marpetgeo.2015.04.004>
- Soukup, K., Schneider, P. et Šolcová, O. (2008). Comparison of Wicke–Kallenbach and Graham's diffusion cells for obtaining transport characteristics of porous solids. *Chemical Engineering Science - CHEM ENG SCI*, 63, 1003-1011. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2007.10.032>
- Terzaghi, K. (1943). *Theoretical soil mechanics*. https://scholar.google.com/scholar_lookup?title=Theoretical%20Soil%20Mechanics&publication_year=1943&author=K.%20Terzaghi
- Thorel, L. (1995). *Argilites de Haute Marne, Caractérisation géomécanique* (Rapport ANDRA).
- Tournassat, C., Gaucher, E., Fattahi, M. et Grambow, B. (2007). On the mobility and potential retention of iodine in the Callovian–Oxfordian formation. *Physics and Chemistry of The Earth - PHYS CHEM EARTH*, 32, 539-551. <https://doi.org/10.1016/j.pce.2005.12.004>
- Truche, L. (2009). *Transformations minéralogiques et géochimiques induites par la présence d'hydrogène dans un site de stockage de déchets radioactifs* [These de doctorat, Toulouse 3]. <https://www.theses.fr/2009TOU30172>
- Valere, F., Berest, P. et Gharbi, H. (2002). Interaction between creep, swelling and pressure-solution during indentation tests. *Clays in Natural and Engineered Barriers for Radiactive Waste Confinement*, 207-208.
- Van Geet, M., Bastiaens, W. et Ortiz, L. (2008). Self-sealing capacity of argillaceous rocks: Review of laboratory results obtained from the SELFRAC project. *Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C*, 33, S396-S406. <https://doi.org/10.1016/j.pce.2008.10.063>
- Van Genuchten, M. (1980). A Closed-form Equation for Predicting the Hydraulic Conductivity of Unsaturated Soils1. *Soil Science Society of America Journal*, 44. <https://doi.org/10.2136/sssaj1980.03615995004400050002x>
- Vassenden, F., Sylta, Ø. et Zwach, C. (2003). *Secondary Migration in a 2D Visual Laboratory Model*. <https://doi.org/10.3997/2214-4609.201405814>
- Vincké, O., Longuemare, P., Bouteica, M. et Deflandre, J.-P. (1998). *Investigation of the Poromechanical Behavior of Shales in the Elastic Domain*. <https://doi.org/10.2118/47589-MS>
- Wang, C., Briffaut, M., Talandier, J. et Skoczylas, F. (2024). Self-sealing of pre-cracked callovo-oxfordian claystone: Implications for geological disposal of nuclear waste. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences*, 175. <https://doi.org/10.1016/j.ijrmms.2024.105678>

- Wang, H., de La Vaissière, R., Vu, M.-N., La Borderie, C. et Gallipoli, D. (2022). Numerical modelling and in-situ experiment for self-sealing of the induced fracture network of drift into the Callovo-Oxfordian claystone during a hydration process. *Computers and Geotechnics*, 141, 104487. <https://doi.org/10.1016/j.compgeo.2021.104487>
- Wesselingh, J. A. et Krishna, R. (2000). *Mass Transfer in Multicomponent Mixtures*. Delft University Press.
- Wise, D. L. et Houghton, G. (1966). The diffusion coefficients of ten slightly soluble gases in water at 10–60°C. *Chemical Engineering Science*, 21(11), 999-1010. [https://doi.org/10.1016/0009-2509\(66\)85096-0](https://doi.org/10.1016/0009-2509(66)85096-0)
- Wu, Y.-S., Pruess, K. et Persoff, peter. (1998). Gas Flow in Porous Media With Klinkenberg Effects. *Transport in Porous Media*, 32(1), 117-137. <https://doi.org/10.1023/A:1006535211684>
- Yang, D., Billiotte, J. et Su, K. (2010). Characterization of the hydromechanical behavior of argillaceous rocks with effective gas permeability under deviatoric stress. *Engineering Geology*, 114(3), 116-122. <https://doi.org/10.1016/j.enggeo.2010.04.002>
- Zhang, C.-L. (2016). The stress–strain–permeability behaviour of clay rock during damage and recompaction. *Journal of Rock Mechanics and Geotechnical Engineering*, 8(1), 16-26. <https://doi.org/10.1016/j.jrmge.2015.10.001>
- Zhang, C.-L. (2018). Thermo-hydro-mechanical behavior of clay rock for deep geological disposal of high-level radioactive waste. *Journal of Rock Mechanics and Geotechnical Engineering*, 10(5), 992-1008. <https://doi.org/10.1016/j.jrmge.2018.03.006>
- Zhang, C.-L., Armand, G., Conil, N. et Laurich, B. (2019). Investigation on anisotropy of mechanical properties of Callovo-Oxfordian claystone. *Engineering Geology*, 251, 128-145. <https://doi.org/10.1016/j.enggeo.2019.02.008>
- Zhang, C.-L. et Rothfuchs, T. (2004). Experimental Study of the Hydro-Mechanical Behaviour of the Callovo-Oxfordian Argillite. *Applied Clay Science - APPL CLAY SCI*, 26, 325-336. <https://doi.org/10.1016/j.clay.2003.12.025>
- Zhang, C.-L. et Rothfuchs, T. (2008). Damage and sealing of clay rocks detected by measurements of gas permeability. *Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C*, 33, S363-S373. <https://doi.org/10.1016/j.pce.2008.10.013>
- Zhang, C.-L., Rothfuchs, T. et Su, K. (2013). Laboratory Experiments on Thermal Effects on Clay Rocks (p. 239-249). <https://doi.org/10.1002/9781118623565.ch23>
- Zhang, C.-L. et Talandier, J. (2023). Self-sealing of fractures in indurated claystones measured by water and gas flow. *Journal of Rock Mechanics and Geotechnical Engineering*, 15(1), 227-238. <https://doi.org/10.1016/j.jrmge.2022.01.014>
- Zhang, F., XIE, S. Y., Hu, D., Shao, J. et Gatmiri, B. (2012). Effect of water content and structural anisotropy on mechanical property of claystone. *Applied Clay Science*, 69, 79-86. <https://doi.org/10.1016/j.clay.2012.09.024>
- Zhang, W. (2021). *Contribution à l'étude expérimentale du comportement mécanique des argilites du Callovo-Oxfordien : effets du chemin de chargement et de la température* [These de doctorat, Université de Lille (2018-2021)]. <https://theses.fr/2021LILUN037>
- Zweigel, P., Lindeberg, E., Moen, A. et Wessel-Berg, D. (2005). Towards a methodology for top seal efficacy assessment for underground CO2 storage. Dans *Greenhouse Gas Control Technologies* (p. 1323-1328). <https://doi.org/10.1016/B978-008044704-9/50145-2>

