
Migration de gaz au travers de l'argilite de Bure : mise en évidence d'un passage discontinu

Catherine Davy¹, S. M'Jahad^{1,3}, F. Skoczylas¹, J. Talandier²

¹ LML UMR8107 et Ecole Centrale de Lille, CS20048, 59650 Villeneuve d'Ascq Cedex (catherine.davy@ec-lille.fr; frederic.skoczylas@ec-lille.fr)

² Andra, Parc de la Croix Blanche, 1-7 rue Jean Monnet, 92298 Châtenay Malabry Cedex (jean.talandier@andra.fr)

³ EDF R&D, AMA - Groupe mécanique non linéaire, 1 avenue du Général De Gaulle, 92141 Clamart (sofia.mjahad@centraliens-lille.org)

RÉSUMÉ. Cet article présente une étude expérimentale qui met en évidence le passage discontinu puis continu de gaz au travers de l'argilite de l'Est auto-colmatée (i.e. ayant une perméabilité à l'eau après macro-fracturation de l'ordre de 10^{-20} - 10^{-21} m²) ou intacte. De part sa nature intermittente et sa cinétique d'apparition, le passage discontinu est attribué soit à du snap off capillaire, soit à l'ouverture/fermeture de micro-fissures (créées par la pression de gaz, du fait de la faible résistance en traction de la roche argileuse). L'argilite auto-colmatée présente une pression de percée de gaz significativement inférieure à celle de l'argilite intacte (non macro-fissurée et auto-colmatée par l'eau de site), démontrant ainsi sa capacité limitée de self-healing (cicatrisation).

ABSTRACT. This contribution presents the experimental evidence of discontinuous gas breakthrough, followed by continuous gas passage through the Eastern Paris basin claystone, either self-sealed (i.e. with a water permeability after macro-fracturing on the order of 10^{-20} - 10^{-21} m²) or undisturbed. Owing to its intermittent nature and to its kinetics, discontinuous gas passage is attributed to either capillary snap off or to the alternate opening/closure of micro-cracks generated by the tensile failure of the claystone solids. Self-sealed claystone has a significantly lower gas breakthrough pressure than undisturbed matter, which demonstrates its limited self-healing ability.

MOTS-CLÉS : argilite, pression de percée, snap off capillaire, diffusion, auto-colmatage, cicatrisation.

KEY WORDS: claystone, breakthrough pressure, capillary snap off, diffusion, self-sealing, self-healing.

1. Introduction

1.1. Contexte industriel

Pour de nombreux pays industrialisés, le stockage à long terme des déchets radioactifs industriels de moyenne et longue vie est planifié dans des formations géologiques profondes, de type granitique (Suède, Canada) ou argileuse (France, Belgique, Suisse notamment). En France, le système de stockage envisagé est constitué d'une barrière naturelle à -500m de profondeur, au sein d'une roche argileuse, l'argilite de l'Est (faite de strates naturelles de sédimentation) associée à des barrières artificielles (colis vitrifiés, entourés de métal, placés dans des tunnels recouverts de bétons et scellés par de l'argile gonflante). L'excavation des tunnels provoque la création d'un réseau de macro-fissures dans la roche hôte à proximité de la surface, dans une zone appelée EDZ (*Excavation Damaged Zone*). Après fermeture des tunnels, l'eau de la nappe phréatique environnante va progressivement imbiber le dispositif, jusqu'à *potentiellement* permettre son scellement. En parallèle, différents processus (corrosion humide, radiolyse de l'eau et dégradation de matières organiques, etc.) vont se produire et former du gaz au sein des tunnels, et en particulier de l'hydrogène, susceptible de monter suffisamment en pression, puis de fuir au travers de la barrière ouvragée. Il est donc crucial d'étudier l'efficacité du scellement de l'ensemble de la barrière ouvragée, et en particulier de la roche hôte, dans l'EDZ et à plus grande distance des tunnels (zone dite non perturbée) du fait de l'écoulement d'eau souterraine, et vis-à-vis d'une montée en pression de gaz.

Des travaux précédents, réalisés au LML [DAV-07], ont permis d'identifier expérimentalement la capacité d'auto-colmatage (*self-sealing*) de l'argilite initialement fracturée, supposée représentative de l'argilite située autour des tunnels, ou EDZ (*Excavation Damaged Zone*). Nous avons testé différents échantillons de laboratoire (diamètre 37mm, longueur 70-75mm) : chacun était fissuré suivant un plan diamétral par essai brésilien (essai de fendage) et placé dans des conditions proches de celles rencontrées *in situ* en termes de contraintes et de pression interstitielle. Pour cela, l'échantillon est confiné à une pression de 12 MPa et soumis à une injection d'eau à l'une de ses extrémités, à une pression de 4MPa. Après 4 à 21 jours d'injection d'eau, la perméabilité à l'eau mesurée pour ces échantillons (au nombre de 4) descend à des valeurs de 1 à $7,9 \times 10^{-21}$ m², soit la perméabilité de l'argilite non endommagée (dite intacte). L'argilite montre donc d'excellentes capacités d'auto-colmatage en présence d'un gradient de pression d'eau.

Suite à ces expérimentations en présence d'eau seule, une campagne expérimentale a été réalisée pour comprendre le comportement de l'argilite soumise à une pression de gaz. L'étude préliminaire [DUV-11] a permis d'identifier la pression de passage *discontinu* de gaz P_{gaz} pour différents échantillons d'argilite, de provenance différente dans la couche géologique, de hauteur comprise entre 10 et 30mm, sous l'effet d'un confinement variable (6-12MPa). Alors que le confinement influe peu sur les résultats de P_{gaz} , plus l'échantillon est haut, plus P_{gaz} augmente ; l'orientation de la roche argileuse (isotrope transverse) a également une influence

significative vis-à-vis du passage de gaz : le gaz migre plus facilement parallèlement aux strates que perpendiculairement. Cet effet est essentiellement attribué à la difficulté expérimentale de disposer d'échantillons intacts dans le sens des strates (fragilité accrue). L'objectif ici est d'identifier expérimentalement la pression de migration (ou passage) de gaz *discontinue*, puis *continue*, au travers de l'argilite auto-colmatée ou intacte (jamais fracturé), et à les comparer. A ce stade, le passage discontinu peut être attribué (entre autres) à la dissolution du gaz dans l'eau porale, suivie de sa diffusion jusqu'à la face aval. En effet, une chambre est présente en aval de notre dispositif, où les fluides s'accumulent (potentiellement par diffusion) jusqu'à la détection proprement dite (par ouverture du robinet fermant cette chambre). Cet aspect est investigué au moyen d'un mélange de gaz (hélium et argon) dont le produit solubilité/diffusivité dans l'eau est significativement différent (5.92×10^{-19} mol/N.s pour l'argon et 4.48×10^{-19} mol/N.s pour l'hélium à 15°C) : si le passage se fait par dissolution/diffusion, seul l'argon sera détecté à l'aval du dispositif. Un aspect à étudier est la capacité de cicatrisation (i.e. absence de mémoire de la fracture présente avant colmatage, ou *self healing*) de cette argilite [DAV-03] : la cicatrisation sera effective si la capacité de l'argilite à se laisser traverser par le gaz après auto-colmatage (*self-sealing*) est identique (ou similaire) à celle de l'argilite intacte.

1.2. Phénomènes d'entrée et de percée de gaz au travers d'un matériau initialement saturé en eau

Les travaux antérieurs [PUS-83, HOR-99, HIL-02, DAV-09, MAR-05] sur la migration de gaz au travers d'un matériau initialement saturé en eau décrivent différentes notions. Dans tous les cas, on suppose le matériau initialement complètement saturé en eau, et soumis à une pression de gaz sur une face, et éventuellement soumis en parallèle à une contrainte externe (hydrostatique généralement), voir Figure 1.

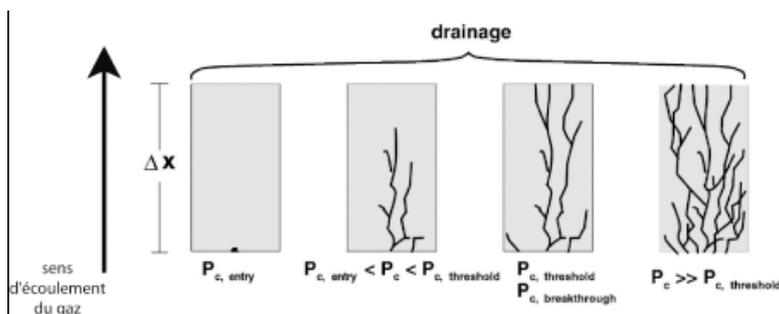


Figure 1 : Schéma des différentes pressions caractéristiques de la migration de gaz au travers d'un matériau à pores fins initialement saturé en eau [HIL-02].

Phénomènes capillaires. Indépendamment des phénomènes de dissolution du gaz et de diffusion à travers l'eau porale (voir ci-dessous), ou de ruptures localisées du squelette solide (voir ci-dessous également), des phénomènes de nature capillaire se produisent lorsque du gaz tente de traverser le milieu poreux. Tout d'abord, la

pression dite d'entrée correspond à l'entrée du gaz du côté amont de l'échantillon : aucune molécule de gaz ne *traverse* le matériau, sauf éventuellement par dissolution et diffusion dans l'eau porale. Pourtant, en aval de l'échantillon, on peut observer de l'eau éjectée du réseau poreux sous l'effet de l'entrée du gaz en amont. Avec l'augmentation de la pression de gaz amont, la pénétration du gaz progresse dans le réseau poreux par capillarité, de façon continue ou discontinue (par *snap off* [ROS-00]), jusqu'à ce qu'un premier réseau de pores continu traverse l'échantillon de part en part : on atteint alors la pression dite de percée. Par la suite, en augmentant encore la pression de gaz, le nombre de chemins de percée se multiplie, et un débit croissant de gaz traverse le matériau, qui peut même se dé-saturer progressivement par dissolution de l'eau porale dans le gaz sec.

Phénomènes propres aux matériaux de faible résistance en traction (roches argileuses). Pour ces matériaux, dont l'argilite de l'Est de la France fait partie, le passage progressif du gaz s'accompagne de ruptures locales en traction du squelette solide, et de la création de micro-fissures que le gaz contribue à ouvrir (et à maintenir ouvertes). Dans ce cadre, le passage de gaz a été associé à une dilatation du matériau, mesurée transversalement à la direction de l'écoulement [CUS-12]. Par ailleurs, si la pression de gaz chute localement, les micro-fissures peuvent se refermer, ralentissant ainsi la progression du gaz. Celui-ci transfère alors via des micro-fissures qui, alternativement, s'ouvrent et se referment, jusqu'à atteindre la face aval.

Phénomènes de dissolution/diffusion. Quelle que soit la pression de gaz appliquée sur la face amont de l'échantillon, les molécules de gaz vont progresser au travers du milieu poreux par dissolution dans l'eau porale et diffusion. Déterminons le temps caractéristique de transport de gaz par dissolution/diffusion dans le cas unidimensionnel. La conservation de la masse pour l'eau et la première loi de diffusion de Fick (pour un milieu entièrement saturé en eau) s'écrivent :

$$\frac{\partial(\rho_l \phi)}{\partial t} + \text{div}(\rho_l \vec{q}_l) = 0 \quad [1]$$

$$\vec{q}_l = -\phi \frac{D_l}{\rho_g} \vec{\nabla} \rho_l \quad [2]$$

où ρ_l est la masse volumique de l'eau à température donnée (en N/m^3), ϕ est la porosité du milieu considéré, q_l est le flux de liquide (en m/s), ρ_g est la masse volumique du gaz (en N/m^3), et D_l est le coefficient de diffusion du gaz dans l'eau à température donnée (en m^2/s). Par rapport à la diffusion dans un milieu de dimensions infinies, la diffusion au travers d'un milieu poreux complexe est généralement décrite sous la forme du produit entre le coefficient (D_l / ρ_g) et un facteur de résistance au passage du fluide (eau chargée de gaz dissous) $f(S_1)$, où S_1 est le degré de saturation en eau du milieu (ici $S_1=1$) [CAR-10]. Pour un milieu entièrement saturé en eau, le facteur $f(S_1)$ est représenté par le produit entre la porosité ϕ et la tortuosité τ du milieu. En première approche, on suppose que $\tau = 1$.

Par ailleurs, la loi de dissolution de Henry décrit la quantité de gaz dissoute dans l'eau par :

$$\rho_l = M_g p_g K_H \quad [3]$$

où M_g est la masse molaire du gaz (en kg/mol), p_g est la pression du gaz et K_H est la constante de Henry (en mol/m³/Pa). Le gaz en amont du milieu poreux est supposé suivre la loi des gaz parfaits à température T (en K), avec $R=8.34$ J/K/mol :

$$p_g M_g = R T \rho_g \quad [4]$$

La combinaison des équations [1, 2, 3] donne :

$$\frac{\partial \rho_l}{\partial t} = (D_l / \rho_g) \vec{\nabla} \cdot (\rho_l \vec{\nabla} \rho_l) = (D_l / \rho_g) (\rho_l \Delta \rho_l + (\vec{\nabla} \rho_l)^2) \quad [5]$$

Un développement limité au premier ordre en ρ_l de l'équation [5] est effectué, pour déterminer le temps caractéristique τ_d de la dissolution/diffusion pour un échantillon de milieu poreux de longueur (hauteur) h :

$$\frac{\tau_d}{h^2} = \frac{\rho_g}{D_l \rho_l} = \frac{1}{D_l R T K_H} \quad [6]$$

Pour l'argon à 20°C, $K_H = 1,38 \times 10^{-5}$ mol.m⁻³. Pa⁻¹ [SAN-99], $D_l = 2,5 \times 10^{-9}$ m².sec⁻¹ [BOE-69], ce qui donne pour un échantillon de hauteur $h=10$ mm : $\tau_d = 13$ jours et 17 heures, et 123 jours et 12h pour un échantillon de hauteur 30mm. De ce fait, pour l'ensemble de nos échantillons (de hauteur comprise entre 10 et 30mm), nous avons retenu une vitesse de montée en pression de gaz de l'ordre de 24h, pour ne détecter en face aval que le passage de gaz dû aux phénomènes capillaires ou par micro-fissuration du matériau.

2. Méthode expérimentale

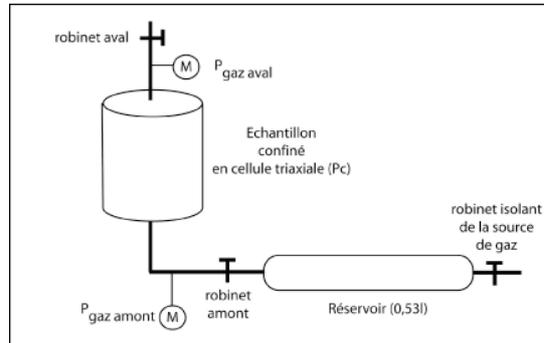


Figure 2 : Schéma de principe de l'essai de pression de percée sur échantillon d'argilite préalablement saturé en eau

L'essai est conduit en cellule triaxiale, sous confinement imposé par une pression d'huile de 6 ou 12MPa, proche de l'état de contraintes *in situ*. Chaque échantillon est de hauteur variable, entre 10 et 30mm, et de diamètre 37 ou 65mm. La plupart des échantillons sont obtenus par carottage et découpe au fil, seuls les trois derniers ont été réalisés par tournage et découpe au fil. Ils sont issus de cellules

T fournies par l'Andra, et extraites horizontalement ou verticalement par rapport au plan de litage du milieu géologique. Après saturation en eau jusqu'à la perméabilité de l'argilite auto-colmatée (10^{-20} - 10^{-21} m²), les tuyaux en amont de l'échantillon sont vidés de leur eau, et une chambre aval de 2cl (munie d'un robinet) est mise en place. Côté amont, un gaz seul (argon) ou un mélange de deux gaz (50% argon- 50% hélium) est injecté. La pression de gaz est imposée à une valeur « faible », de l'ordre de 10 bars, maintenue constante pendant 24h et incrémentée par la suite toutes les 24h de 5 bars en 5 bars environ. Au terme des 24h à pression de gaz amont donnée, le robinet aval est ouvert pour détecter la présence d'argon au moyen d'un détecteur dédié (Gascheck, précision de mesure de +/-0,1 microlitre/sec), ou au moyen d'un spectromètre de masse, qui, lui, mesure la présence d'argon *et* d'hélium avec une précision de l'ordre de 2ppm (2 particules par million, i.e. 2 particules / 10⁶ particules). L'ensemble des échantillons testés est présenté dans le tableau ci-dessous, avec leur perméabilité au gaz initiale attestant de leur état d'endommagement avant auto-colmatage éventuel.

Sample n.	Core n.	Orientation	Height (mm); Diameter (mm)	Initial gas permeability (m ²)	Sample state
1	34386	horizontal	10.9; 36.18	7.2×10^{-16}	cored & macro-cracked
2	34386	horizontal	10.76; 36.2	0.95×10^{-19}	cored & macro-cracked
3	44331	vertical	19.74; 65	2.7×10^{-20}	machined by turning
4	44140	N/A	30; 65	N/A	machined by turning
5	44331	vertical	9.5; 65	N/A	machined by turning

3. Résultats

Pour l'échantillon n.1 initialement macro-fracturé, la Fig. 3 montre la cinétique de montée en pression de gaz amont (argon pur) et la cinétique d'évolution de la pression aval. A une pression amont de 1.64MPa abs., un passage d'argon discontinu est mesuré au détecteur Gascheck, suivi d'un passage continu à 4.7MPa abs., valeur à laquelle on mesure une perméabilité au gaz de $9,1 \times 10^{-21}$ m². Cette progressivité dans le passage de gaz (discontinu puis continu) a été étudiée en détail sur l'échantillon n.5 obtenu par tournage (hauteur 9,5mm, diamètre 65mm, orientation verticale).

L'échantillon n.5 a été testé avec le mélange hélium/argon. Nous avons observé qu'après 24h à 3.6 MPa abs. amont, le passage d'hélium se produit de façon discontinue, irrégulière et erratique, pendant plus de deux jours, pour finir par devenir continu au bout d'un total de 87h14mins à la même pression amont imposée, voir Fig. 4. La perméabilité au gaz est alors de l'ordre de 6×10^{-21} m². Cet essai montre que la nature du passage discontinu de gaz n'est pas aisément attribuable à du passage par dissolution/diffusion dans l'eau porale, comme les calculs de temps caractéristiques l'ont montré de façon théorique. Il s'agit plutôt d'un phénomène soit de digitation capillaire discontinue (*snap off*) [ROS-00], soit

d'ouverture-fermeture de micro-fissures due à la faible résistance en traction de l'argilite de l'Est [CUS-12].

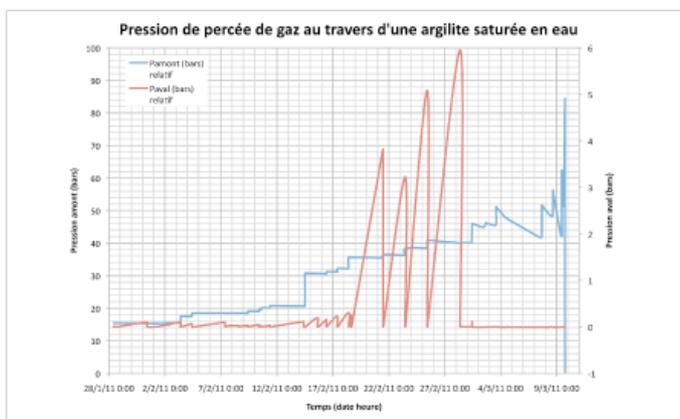


Figure 3 : Echantillon 1 : Evolution temporelle de la pression amont (bleu) et aval (rouge) en fonction du temps, sur l'ensemble de l'essai. Les chutes régulières de la pression dans la chambre aval correspondent à l'ouverture du robinet aval pour la détection du passage du gaz.

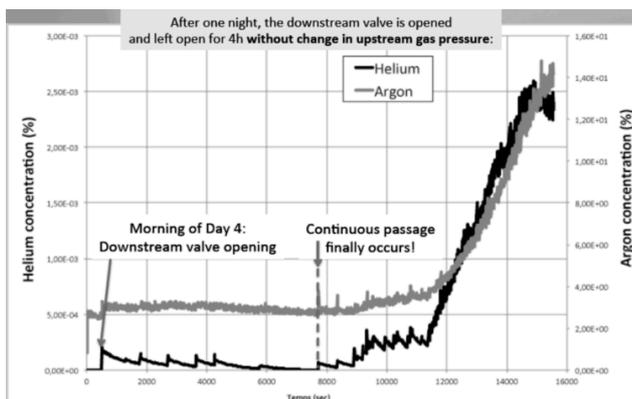


Figure 4 : Echantillon n.5 - Relevé de la concentration d'argon et d'hélium en fonction du temps, après 24h robinet aval fermé à 3.55-3.504 MPa abs (non représenté). Le robinet aval est ouvert à l'instant t=500 sec.

Enfin, les échantillons 3 et 4 (hauteurs respectives 19.74 et 30mm) sont constitués d'argilite dite intacte : ils ont été préparés à partir de carottes récentes (moins de six mois après extraction du site souterrain) et découpe par tournage (et pas sur-carottage). Le passage discontinu (puis continu) est obtenu respectivement à $P_{\text{gaz}} = 4.38\text{MPa}$ et $P_{\text{gaz}} = 5.2\text{-}5.3\text{MPa}$, en bonne cohérence avec les résultats obtenus par d'autres laboratoires [TAL-12]. Ces valeurs sont significativement plus élevées que l'argilite auto-colmatée, attestant d'un *self-healing* (cicatrisation) limité.

4. Conclusion

Le passage discontinu de gaz se produit à des débits de fuite très faibles, qui augmentent progressivement jusqu'au passage continu : dans notre dispositif, aucun auto-colmatage par l'eau ne permet de re-saturer le matériau séché par le passage de gaz (pas de réserve d'eau disponible). *In situ*, une compétition entre l'auto-colmatage et le passage discontinu de gaz (par capillarité ou ouverture/fermeture de micro-fissures) est anticipée. Par son intermittence, la percée discontinue de gaz, mise en évidence ici, est une difficulté actuelle pour la modélisation et la prédiction du comportement de l'ouvrage, dans le sens où les modèles continus (type éléments finis) ne sont pas capables de la représenter. Des modèles du type réseau de pores semblent par contre prometteurs.

Références bibliographiques

- [BOE-69] BOERBOOM, A. J. H., KLEYN, G., 1969. *J. Chem. Phys.* 50.
- [CAR-10] CARIOU S., Thèse de doctorat de l'ENPC, 2010.
- [CUS-12] CUSS R., HARRINGTON J., WP3 meeting of the FP7 EU project Forge, Madrid, March 2012.
- [DAV-03] DAVIES C., BERNIER F., In: Proceedings of a European Commission CLUSTER Conference and Workshop, Luxembourg, November 3–5, 2003, Report EUR 21028EN.
- [DAV-07] DAVY C. A., SKOCZYLAS F., BARNICHON J.-D., LEBON P., *Physics and Chemistry of the Earth*, pp. 667-680, Vol. 32 (8-14) 2007.
- [DAV-09] DAVY C. A., SKOCZYLAS F., LEBON P., T. DUBOIS T., *Applied Clay Science* 42 (2009) 639-648.
- [DUV-11] DUVEAU G., M'JAHAD S., DAVY C.A., SKOCZYLAS F., SHAO J.-F., TALANDIER J., GRANET S., 45th US Rock Mechanics/Geomechanics Symposium, June 26-29, 2011.
- [HIL-02] HILDENBRAND A., SCHLOMER S., KROOS B., 2002. *Geofluids* 2, 3–23.
- [HOR-99] HORSEMAN S.T., HARRINGTON J.F., SELLIN P., 1999. Gas migration in clay barriers. *Engineering Geology* 54, 139–149.
- [MAR-05] MARSCHALL P., HORSEMAN S., GIMMI T., 2005. *Oil & Gas Science and Technology Rev. IFP* 60 (1), pp. 121-139.
- [PUS-83] PUSCH R., FORSBERG T., SKBF-KBS Technical Report, TR. 83-71, SKBF-KBS, 1983.
- [ROS-00] ROSSEN W. R., 2000. *Colloids and Surfaces A* 166, pp. 101-107.
- [SAN-99] SANDER R., In: Air Chemistry Department, Max-Planck Institute of Chemistry, PO Box 3060, Mainz, Germany.
- [TAL-12] TALANDIER J., 2012. In: Plenary conference, Transfert 2012, Ecole Centrale de Lille, March 21st.