

J'ai l'honneur de vous inviter à ma soutenance de thèse qui se tiendra le 30 novembre 2010 à 14h à l'Université Paris 6, campus de Jussieu, Tour 55-56, niveau 4, salle Fourcade.
Cette thèse s'intitule :

**Influence des processus osmotiques sur l'excès de charge hydraulique
mesuré dans la formation argileuse du Toarcien/Domérien de
Tournemire**

elle a été réalisé à l'Université Pierre et Marie Curie - Paris 6, UMR-7619 Sisyphe, à l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN) et à AMPHOS XXI Consulting S.L., en cofinancement par l'IRSN et AMPHOS XXI ;
sous la direction de Julio Gonçalves et Sophie Violette et encadré par Jean-Michel Matray et David Arcos.

le jury sera composé de :

<i>Rapporteurs</i>	M Philippe Cosenza M Philippe Gouze
<i>Examineurs</i>	M Pierre Adler M Daniel Coehlo M Eric Gaucher
<i>co-directeur co-directrice</i>	M Julio Gonçalves Mme Sophie Violette
<i>Encadrants</i>	M David Arcos M Jean-Michel Matray
<i>Invité</i>	M Frédéric Skoczylas

S'en suivra le traditionnel pot de l'amitié.

Joachim Trémosa

joachim.tremosa@irsn.fr

Abstract

In the framework of the studies dealing on ability to store radioactive wastes in argillaceous formations, signification of interstitial pressures is an important point to understand water and solutes transport. In very low permeability argillaceous formations, like those studied in the Callovo-Oxfordian of the Paris basin by ANDRA, pore pressure is frequently higher than the theoretical hydrostatic pressure or than the pressure in the surrounding aquifers. Such an overpressure is also measured in the Toarcian/Domerian argillaceous formation ($k = 10^{-21} \text{ m}^2$), studied by the IRSN in the underground research laboratory of Tournemire (Aveyron, France). The hydraulic head profile was enhanced in this manuscript and found to present a $30 \pm 10 \text{ m}$ excess-head. This excess-head can be due to compaction disequilibrium of the argillaceous formation, diagenetic evolution of the rock, tectonic compression, changes in hydrodynamic boundary conditions or osmotic processes. Amongst these potential causes, chemical osmosis and thermo-osmosis, a fluid flow under a chemical concentration and a temperature gradient, respectively, are expected to develop owing to the small pore size and the electrostatic interactions related to the charged surface of clay minerals.

The goal of the work presented here was to study and quantify the contribution of each cause to the measured excess-head. Chemo-osmotic and thermo-osmotic permeabilities were obtained by experiments and using theoretical models. Theoretical models are based on the reproduction of the interactions occurring between the charged surface of clay minerals and pore solution and their upscaling at the representative elementary volume macroscopic scale. Chemical osmosis phenomenon is related to anionic exclusion and the determination of the chemo-osmotic efficiency requires the resolution of an electrical interactions model. A triple-layer-model which considers diffuse layers overlapping was improved during this thesis to be able to take into account the effect of multi-ionic solutions, i.e. nearest than the natural waters composition, and, thus, to constrain better the chemo-osmotic efficiency ε . Thermo-osmosis process is poorly characterized so that no satisfactory macroscopic expression to calculate the thermo-osmotic permeabil-

ity k_T was available nor thermo-osmotic experiments performed on natural shales, so far. This process is interpreted as being related to changes properties of water sorbed at clay minerals surface compared with bulk water. A thermo-osmotic permeability predictive model is proposed here, based on the modifications of the hydrogen bonds associated with water molecules located at the vicinity of the solid surface. Input parameters of this model only consist in petrophysical parameters and medium conditions (porewater concentration and temperature). Chemical osmosis and thermo-osmosis experiments were performed on Tournemire argillite samples and in a test interval equipped borehole at the Tournemire URL. These experiments have consisted in inducing a concentration or temperature gradient across a sample for the laboratory experiments and between the borehole test interval and the formation for the in situ experiments. Osmotic flows were identified by the interpretation of the pressure evolution in the test interval using a hydro-thermo-chemo-mechanical model based on the mass balance equations and the coupled-flow equations. Inversion of the measured pressure signals allowed identifying a chemo-osmotic efficiency ε ranging between 0.014 and 0.31 and a thermo-osmotic permeability k_T ranging between 6×10^{-12} and $2 \times 10^{-10} \text{ m}^2 \text{ K}^{-1} \text{ s}^{-1}$ for the Tournemire clay-rock.

In parallel to the characterization of the osmotic processes in the argillaceous formation of Tournemire, porewater composition and temperature profiles were established. Temperature profile was obtained by direct measurement in different boreholes. Porewater composition profile was calculated by a geochemical model developed to reproduce the thermodynamic equilibrium reactions with mineral phases and cation exchange between the clay-rock and the pore solution. Added to the requirement of the temperature and concentration profiles across the Tournemire argillaceous formation as force gradients to reproduce the osmotic flows through the formation, the porewater composition is also needed as it is an essential input parameter to predict the chemo-osmotic efficiency coefficient.

At last, the characterization of the osmotic processes and the different force gradient profiles allowed estimating the contribution of the osmotic and hydraulic processes to the measured excess-hydraulic head profile measured in the argillaceous formation of Tournemire. Considerations on the hydro-mechanical behaviour of the argillaceous formation allowed rule out the other possible causes of excess-head and lead to the conclusion that only the hydraulic processes, related to the intrinsic permeability variation across the formation, and osmotic processes can explain the pressure field in the Toarcian/Domerian formation. The results particularly highlight the importance of the spatial variations of the hydraulic and osmotic permeability coefficients in the generation of an excess-hydraulic head.

Résumé

Dans le cadre des études portant sur la faisabilité d'un stockage de déchets radioactifs dans des formations argileuses, la signification des pressions interstitielles est une question importante pour comprendre les transports d'eau et de solutés. Dans les formations argileuses de très faible perméabilité, comme celle étudiée par l'ANDRA dans le Callovo-Oxfordien du bassin de Paris, la pression interstitielle est fréquemment supérieure à la pression hydrostatique théorique ou à la pression dans les aquifères encaissants. Une telle surpression est aussi enregistrée au sein de la formation argileuse du Toarcien/Domérien ($k = 10^{-21} \text{ m}^2$), étudiée par l'IRSN au laboratoire souterrain de recherche de Tournemire (Aveyron). Le profil de charge hydraulique, qui présente un excès de charge de 30 +/- 10 m, est précisé dans ce manuscrit. Cette surpression peut-être due à des déséquilibres de compaction de la formation argileuse, à l'histoire diagénétique de la roche, à des compressions tectoniques, à des changements de conditions hydrodynamiques aux limites de la formation ou à des phénomènes d'osmose. Parmi ces causes potentielles, l'osmose chimique et l'osmose thermique, respectivement, un flux d'eau sous un gradient de concentration et sous un gradient de température, sont susceptibles de se développer dans les milieux argileux par le fait de la faible taille des pores et des interactions électrostatiques liées aux charges de surface des minéraux argileux.

Le travail effectué a consisté à étudier et quantifier l'importance de chacun des processus responsables des surpressions à Tournemire. Les paramètres de couplage associés aux deux processus osmotiques, l'osmose chimique et la thermo-osmose, ont été acquis expérimentalement et à l'aide de modèles théoriques. Les modèles théoriques se fondent sur la reproduction des interactions qui ont lieu entre la surface chargée des minéraux argileux et la solution porale et leur mise à l'échelle macroscopique du volume élémentaire représentatif. Le phénomène d'osmose chimique est lié à l'exclusion anionique et nécessite la résolution d'un modèle électrique d'interactions. Un modèle triple couche considérant le recouvrement des couches diffuses a été amélioré durant cette thèse pour prendre en compte l'effet des solutions multi-ioniques,

i.e. plus proche de la composition des eaux naturelles, et de mieux contraindre l'efficacité chemo-osmotique ε . La thermo-osmose est moins bien caractérisée de telle sorte qu'il n'existait pas d'expression macroscopique satisfaisante pour calculer la perméabilité thermo-osmotique k_T , ni d'expériences de thermo-osmose sur matériaux naturels. Ce processus est interprété comme étant causé par un changement des propriétés de l'eau liée à la surface des minéraux argileux par rapport à celles de l'eau libre. Nous proposons ici un modèle prédictif de la perméabilité thermo-osmotique basé sur la modification des liaisons hydrogène autour des molécules d'eau proche de la surface du solide et ayant pour seules données d'entrée des paramètres pétrophysiques et les conditions du milieu (concentration de l'eau porale de température). Les expériences d'osmose chimique et thermique ont été réalisées sur échantillons d'argilite de Tournemire et dans un forage équipé d'une chambre de test à la Station Expérimentale de Tournemire. Ces expériences ont consisté à induire un gradient de concentration ou de température à travers un échantillon pour les expériences en laboratoire et entre la chambre de mesure d'un forage et la formation pour les expériences sur site. Les flux osmotiques associés sont évalués grâce à l'interprétation de l'évolution des pressions dans les intervalles de mesure avec un modèle hydro-thermo-chemo-mécanique fondé sur les lois de conservation de la masse combinées avec les équations de flux couplés. L'inversion des signaux de pression mesurés permettent d'obtenir l'efficacité d'osmose chimique (ε entre 0.014 et 0.31) ainsi que la perméabilité thermo-osmotique (k_T entre 6×10^{-12} et $2 \times 10^{-10} \text{ m}^2 \text{ K}^{-1} \text{ s}^{-1}$) de l'argilite de Tournemire.

En parallèle à la caractérisation des processus osmotiques dans la formation argileuse de Tournemire, les profils de composition de l'eau porale et de température ont été établis. Le profil de température a été obtenu par mesure directe dans plusieurs forages. Le profil de composition de l'eau porale a nécessité le développement d'un modèle géochimique visant à reproduire les réactions d'équilibre thermodynamique avec les phases minérales et par échanges cationiques entre la roche argileuse et la solution porale. Ajouté au fait que le profil de concentration chimique est la force motrice de l'osmose chimique dans la formation, la composition de l'eau porale est une donnée nécessaire pour calculer le coefficient d'efficacité chemo-osmotique.

Enfin, la caractérisation des processus osmotiques et des différents profils de force motrice nous a permis d'estimer la contribution des phénomènes osmotiques et hydrauliques au profil d'excès de charge hydraulique observé dans la formation de Tournemire. Des considérations sur le comportement hydromécanique de la formation argileuse ont permis d'écarter les autres causes possibles d'excès de charge et ont conduit à la conclusion que seuls les processus hydraulique, lié à la variation de la perméabilité intrinsèque au

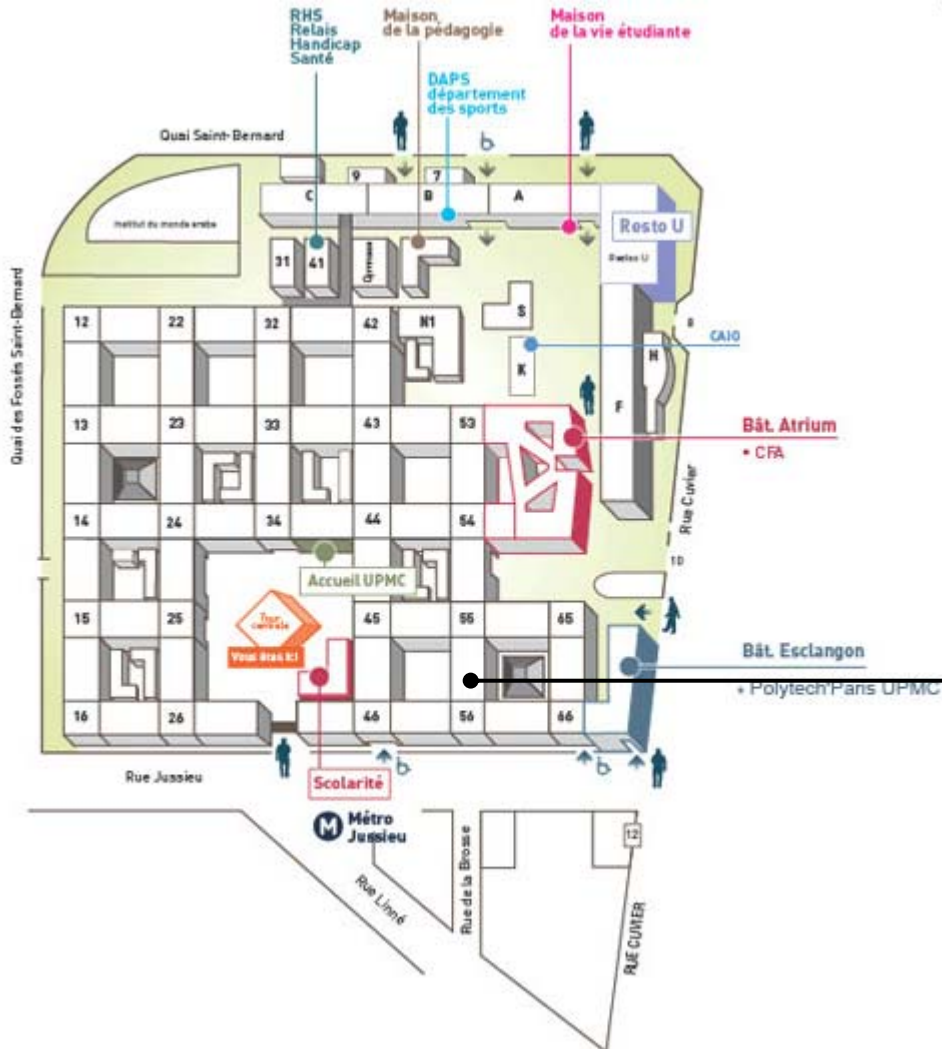
sein de la formation, et osmotiques expliquent le champ de pression dans la formation. Nos résultats pointent particulièrement l'importance de la variation au sein de la formation des coefficients de perméabilité hydraulique et osmotique dans la génération d'un excès de charge.

Influence des processus osmotiques sur l'excès de charge hydraulique mesuré dans la formation argileuse du Toarcien/Domérien de Tournemire

par Joachim Trémosa

Lieu et date de la soutenance

mardi 30 novembre 2010 à 14 h



Université Paris 6
Campus JUSSIEU

Accès :

- Métro, lignes 7 et 10 (station Jussieu)
- Bus 89 (station Jussieu)

Tour 55 niveau 4 couloir 55-56
Salle FOURCADE