

# INTERNATIONAL SOCIETY FOR SOIL MECHANICS AND GEOTECHNICAL ENGINEERING



*This paper was downloaded from the Online Library of the International Society for Soil Mechanics and Geotechnical Engineering (ISSMGE). The library is available here:*

<https://www.issmge.org/publications/online-library>

*This is an open-access database that archives thousands of papers published under the Auspices of the ISSMGE and maintained by the Innovation and Development Committee of ISSMGE.*

# Transfert de masse et de chaleur dans une argile gonflante. Analyse des mécanismes et application à la modélisation prédictive d'un essai in situ à grande échelle

## Heat and mass transfer in expansive clay. Mechanisms analysis and application to the predictive modelling of a large scale in situ experiment

J.C. Robinet, K.D. Dang, T.D. Bui & Q.V. Trinh  
*Euro-Géomat-Consulting, Orléans, France*

### RÉSUMÉ

Cette communication présente les résultats de la modélisation prédictive Thermo-Hydro-Mécanique d'un essai in situ à l'échelle 1 simulant un puits de stockage de déchets radioactifs dans le granite, mené dans le laboratoire de recherche souterrain de Aspö en Suède. L'étude a été réalisée avec le code d'élément fini CLEO et le modèle élasto-plastique Cassius clay permettant de simuler le comportement hydromécanique des argiles gonflantes. Les résultats de la modélisation prédictive (température, humidités relatives, degrés de saturation, contraintes radiales et axiales) sont comparés aux données expérimentales obtenues dans le temps. Les écarts entre modélisation et expérimentation, et leurs causes possibles, sont analysés ; En particulier, vis-à-vis du transfert total d'eau, le transfert de la vapeur d'eau par gradient de concentration ne semble pas être significatif par rapport à celui de l'eau (condensée et vapeur) par effet Soret.

### ABSTRACT

This paper gives an overview of the Thermo-Hydro-Mechanical modelling of the large scale in situ test TBT (Temperature Buffer Test) carried out in the underground research laboratory of SKB, at Aspö (Sweden). This modelling was performed with the Finite Element code CLEO, including the Cassius clay model for swelling clay-based porous media. The modelling and experimental results of relevant variables (temperature, relative humidity, degree of saturation, radial, axial strains and stresses) were evaluated and compared on relevant points, vertical and horizontal scan lines, and at different days since the beginning of TBT. Differences are highlighted and attempts are made to identify the causes of differences and to evaluate their significance. In particular, the transfer of water vapour seems not to be relevant or significant for the moisture transfer in comparison to the Soret effect.

### 1 INTRODUCTION

La modélisation du comportement thermo-hydromécanique couplé (THM) des matériaux à base d'argile gonflante (i.e bentonite), retenus comme barrières ouvragées de corps dans les concepts de stockage de déchets vitrifiés ou de combustibles usés, nécessite le développement de lois de comportement appropriées.

La plupart des travaux de modélisation du transfert de masse d'eau couplé au transfert de chaleur considèrent uniquement les mécanismes dominants. Les modèles conceptuels THM retiennent donc la loi de Fourier pour le transfert de la chaleur, la loi de Darcy généralisée pour le transfert de l'eau liquide, la loi de Fick pour le transfert de l'eau vapeur, la condensation-vaporisation de l'eau, et des modèles du type élasto-plastique avec écrouissage hydrique et endommagement/écrouissage thermique pour décrire le comportement en contrainte-déformation (Alonso et al., 1995 ; Gens et al., 1998 ; Thomas et Sansom, 1995 ; Robinet et al., 1999a, 1999b, 2000).

Ainsi, le schéma conceptuel de transfert de l'eau est généralement le suivant : l'eau est évaporée significativement par ébullition en partie chaude lorsque la température dépasse 100°C et migre sous forme vapeur vers les parties froides où elle se condense. Parallèlement, l'eau liquide est transférée par convection en sens inverse de celui de la vapeur depuis les parties froides vers la partie chaude. Il existe ainsi deux mouvements inverses, l'un pour l'eau vapeur et l'autre pour l'eau liquide. Les modélisations utilisant la théorie classique du transport de vapeur dans les milieux poreux non saturés retiennent des valeurs élevées du coefficient de diffusion de la vapeur  $D_{\text{bentonite}}^v \approx 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$  à  $D_{\text{bentonite}}^v \approx 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ . Toutes les expériences thermiques montrent effectivement une désaturation en partie chaude et un accroissement de la saturation en parties froides (Villar et al., 1997). Les résultats de ces modélisations sont en général en bon accord avec les données expérimentales.

Toutefois, des travaux expérimentaux font aussi état, d'une part, de valeurs faibles du coefficient de diffusion de la vapeur dans les bentonites ( $\approx 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ ), (Takeuchi et al., 1995 ; Suzuki et al., 1999) et, d'autre part, de l'existence d'une désaturation et d'une redistribution de l'eau pour des températures encore inférieures à 100°C.

Plusieurs hypothèses sont avancées pour expliquer cette dernière observation :

- la vaporisation n'est pas uniquement liée à l'ébullition, mais lors d'un chargement thermique il s'agit aussi d'un mécanisme continu par simple équilibrage entre l'eau vapeur et l'eau condensée au fur et à mesure de l'augmentation de la température ;
- la température influe sur la courbe de succion (i.e pression capillaire) par l'intermédiaire de la tension superficielle eau/air/surface argileuse qui dépend effectivement de la température ;
- les gradients thermiques générés pendant les essais thermiques peuvent être très élevés, plusieurs centaines de degré Celcius par mètre. Il est alors possible que ces gradients élevés permettent le déplacement de l'eau suivant le mécanisme Soret non dominant. Ce phénomène a été étudié pour les gaz (Jones et Furry, 1946 ; Grew et Ibbs, 1952) et pour les fluides (Costesque, 1985 ; Cygan et Carrigan, 1992).

L'objet de cette étude est l'évaluation de l'effet de la température sur la pression capillaire et de l'effet des gradients de température (effet Soret ou thermo-diffusion) par rapport au cas de base (mécanisme dominant) sur le transfert de masse d'eau couplé avec le transfert de chaleur.

## 2 ÉVALUATION THÉORIQUE DE L'EFFET DE LA TEMPÉRATURE SUR LA PRESSION CAPILLAIRE

On a retenu une courbe de rétention représentant assez bien le comportement hydrodynamique des matériaux argileux :

$$S_{rw} = \frac{0.007}{0.007 + \left[ \frac{P_c}{P} \right]^{1.04}} \quad (1)$$

où  $S_{rw}$  est le degré de saturation en eau ;  $P_c$ , la pression capillaire (i.e succion) et  $P$ , un paramètre équivalent à une pression capillaire.

La relation entre la pression capillaire (i.e succion) et la tension superficielle  $\sigma$  est donnée par la loi de Laplace pour un pore de rayon  $r$  :

$$P_c = \frac{2 \times \sigma}{r} \quad (2)$$

La variation de la tension superficielle avec la température  $\sigma(T)$  peut être donnée par la relation suivante :

$$\sigma(T) = (1 - 0.625 \times a) \times (0.2358 \times a^{1.256}) \quad (3)$$

$$\text{où } a = \frac{374.15 - T}{647.3} \quad (T \text{ en } ^\circ\text{K})$$

## 3 ÉVALUATION DU PROCESSUS DE THERMO-DIFFUSION OU EFFET SORÉT

L'analyse générale des phénomènes couplés hors équilibre comme la thermo-diffusion est celle de la thermodynamique des processus irréversibles établie par Onsager (Onsager, 1931 ; Prigogine, 1968).

Avec la thermodynamique des processus irréversibles, il est possible de déterminer les relations entre des flux et des affinités. Ainsi, les affinités associées au flux de masse d'eau  $f$  et au flux de chaleur  $q$  sont respectivement  $-\nabla\mu/T$  et  $\nabla(1/T)$  où  $T$  est la température et  $\mu$  le potentiel chimique de l'eau.

En utilisant les coefficients cinétiques  $L_{ij}$  ( $ij=1,2$ ) présentés par Onsager,  $f$  et  $q$  s'écrivent :

$$f = L_{11} \times \left[ -\frac{1}{T} \times \nabla\mu \right] + L_{12} \times \left[ -\frac{1}{T^2} \times \nabla T \right] \quad (4)$$

$$q = L_{21} \times \left[ -\frac{1}{T} \times \nabla\mu \right] + L_{22} \times \left[ -\frac{1}{T^2} \times \nabla T \right] \quad (5)$$

La matrice  $[L_{ij}]_{ij}$  est symétrique :  $L_{12} = L_{21}$ .

L'expression du potentiel chimique molaire de l'eau liquide ( $\text{kg.m}^{-2}.\text{s}^{-2}.\text{mol}^{-1}$ ) en fonction de la température et de la pression est  $\mu_w^* = \mu_{wo}^* + M.v_{sw}.(p_w - p_{wo})$  où  $M$  représente la masse molaire de l'eau ( $18.10^{-3} \text{ kg.mol}^{-1}$ ),  $v_{sw}$  son volume spécifique ( $v_{sw} = 1/\rho_w$ ) et  $p_w$  la pression de l'eau liquide.

Selon les relations d'Onsager, le flux d'eau liquide  $f$  peut être divisé en deux termes,  $f_{pw}$  et  $f_T$ , représentant les contributions respectives du gradient de pression et du gradient de température :

$$f = L_{11} \times \left[ -\frac{d_{pw}}{T} \times \nabla p_w \right] + L_{12} \times \left[ -\frac{1}{T^2} \times \nabla T \right] \quad (6)$$

Soit :  $f = f_{pw} + f_T$  ( $\text{kg.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ) avec :

$$d_{pw} = \left( \frac{\partial \mu_w^*}{\partial p_w} \right)_T = M \times v_{sw} \quad (\text{m}^3.\text{mol}^{-1})$$

Dans l'expression de  $f_T$ , l'influence de la température sur le potentiel chimique standard a été négligée. A température

constante,  $\nabla T = 0$  et le coefficient  $L_{11}$  peut être identifié avec les paramètres physiques précédents comme :

$$f_{pw} = -L_{11} \times \frac{M \times v_{sw}}{T} \times \nabla p_w = U \times \rho_w \quad (7)$$

où  $U$  ( $\text{m.s}^{-1}$ ) représente la vitesse de Darcy :

$$U = -\frac{k.k_{rw}}{\mu_w} \cdot \nabla p_w$$

où  $k$  ( $\text{m}^2$ ) est la perméabilité intrinsèque du milieu poreux, dépendant de la topologie de l'espace poral et de la densité sèche du matériau ;  $k_{rw}$ , la perméabilité relative à l'eau liquide, fonction de la connectivité de la phase liquide à l'intérieur de la porosité et donc du degré de saturation  $S_w$ ;  $\mu_w$  ( $\text{kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}$  ou  $\text{Pa.s}$ ), la viscosité dynamique de l'eau liquide, dépendante de la température.

La relation précédente entre la vitesse de Darcy et l'écoulement de la masse :

$$L_{11} \times \frac{M}{T} \times v_{sw} = \frac{k \times k_{rw}}{\mu_w} \times \rho_w \quad (8)$$

rend possible l'identification du coefficient  $L_{11}$  :

$$L_{11} = \frac{k \times k_{rw} \times \rho_w^2 \times T}{\mu_w \times M}$$

À partir du flux de chaleur dans les mêmes conditions isothermes ( $T = \text{constante}$ ,  $\nabla T = 0$ ), on peut définir le rapport du transport de la chaleur au transport d'eau  $Q_h$  :

$$\left\{ \begin{array}{l} q \\ f \end{array} \right\}_T = \frac{L_{21}}{L_{11}} = Q_h \quad (9)$$

On peut alors énoncer une relation linéaire simple entre les coefficients  $L_{11}$  et  $L_{21}$  :  $L_{21} = Q_h \times L_{11}$ .

À partir de l'identification précédente de  $L_{11}$ , on obtient l'expression de  $L_{21}$  suivante :

$$L_{21} = \frac{k \times k_{rw} \times \rho_w^2 \times T}{\mu \times M} \times Q_h$$

Selon la symétrie de la matrice  $L_{ij}$ , cette expression s'applique également à  $L_{12}$  ( $L_{12} = L_{21}$ ).

En présentant la vitesse « thermo-osmotique »  $V_T$  ( $\text{m.s}^{-1}$ ) de l'eau liquide, comme :

$$\rho_w \times V_T = f_T = \frac{L_{12}}{T^2} \times \nabla T$$

et la diffusivité « thermo-osmotique »  $D_{pT}$  comme le coefficient reliant la vitesse « thermo-osmotique » au gradient thermique  $V_T = D_{pT} \times \nabla T$ , le coefficient « thermo-osmotique »  $L_{12}$  d'Onsager s'identifie immédiatement :  $L_{12} = D_{pT} \times \rho_w \times T^2$ .

La détermination du coefficient de thermo-diffusion (Soret) ne peut être directement obtenue. Il est nécessaire d'effectuer une analyse inverse à partir d'expériences spécifiques menées en laboratoire. Pour cela, on a choisi un essai de chargement thermique de la bentonite MX80 sur maquette réalisé par le CEA. La simulation inverse de l'essai a été effectuée en utilisant les variables et les paramètres présentés dans le tableau 1 et la relation de dépendance exponentielle du coefficient de diffusion de Soret avec la température  $T$  ( $^\circ\text{C}$ ) :

$$D_{Soret}^{eau} = A \times \exp(-B \times T)^2$$

L'ensemble des données sur la courbe capillaire fonction de la température et sur l'effet Soret a ensuite servi pour la modélisation d'un essai aux limites à échelle 1.

Tableau 1 : Caractéristiques thermo-hydrauliques de la bentonite MX80 utilisée dans l'essai maquette du CEA

Caractéristiques Thermo-hydrauliques	Valeurs ou relation
Perméabilité intrinsèque (m <sup>2</sup> )	$3 \times 10^{-21}$
Courbe de rétention	$S_{rw} = \frac{0.007}{0.007 + \left(\frac{P_c}{10000}\right)^{1.04}}$
Coefficient de Soret	$D = 1.15 \times 10^{-12} \times \exp[-(0.008 \times T)^2]$
Pression capillaire initiale (MPa)	39.7
Porosité	0.345
Degré de saturation en eau	68 %

#### 4 APPLICATION À LA MODÉLISATION DE L'EXPÉRIENCE IN SITU TBT (TEMPERATURE BUFFER TEST)

Afin d'évaluer en terme de modélisation, les effets respectifs de la température sur la pression capillaire et du transport d'eau par gradient de température, il a été choisi l'essai in situ TBT mené par l'Andra avec le soutien technique de SKB et de Clay Technology dans le laboratoire souterrain de recherche d'Aspö en Suède (Hökmark, 2003). Cet essai à l'échelle 1 a pour objet d'étudier le comportement thermo-hydromécanique d'une barrière ouvragée de corps à base d'argile gonflante soumise à des températures supérieures à 100°C pour un concept de stockage en puits.

En pratique, un flux de la chaleur de 1500 Watt est appliqué par un corps chauffant cylindrique à une barrière ouvragée de corps constituée en partie basse d'un anneau complet de bentonite MX80 et en partie haute de deux anneaux emboîtés, un anneau central en sable au contact de l'élément chauffant et un anneau externe en MX80. Dès la mise en chauffe, des gradients thermiques de plusieurs centaines de degrés par mètre (°C/m) sont générés, en particulier près du corps chauffant. Un apport artificiel et infini d'eau est imposé en périphérie de la barrière ouvragée par une géomembrane (Fig. 1). La bentonite MX80 utilisée dans TBT est semblable à celle utilisée dans la maquette du CEA.

L'essai TBT a été modélisé suivant trois cas de simulation. Le premier cas (appelé cas de base) correspond à un schéma classique : convection de l'eau liquide (loi de Darcy) et diffusion de l'eau de vapeur (loi de Fick), avec un coefficient de diffusion de la vapeur d'eau constant et faible ( $10^{-10}$  m<sup>2</sup>/s) et une courbe de pression capillaire constante. Le second cas est le cas de base avec la pression capillaire fonction de la température. Le troisième cas est le cas de base complété de l'effet Soret. Les résultats des trois cas de simulation sont montrés sur les figures 2 et 3 pour les champs de température et d'humidité relative.

On note que le cas de base ne fournit pas de résultats satisfaisants aussi bien en température qu'en humidité relative. En revanche, l'introduction de l'effet de Soret conduit à de meilleurs résultats : un séchage plus important est obtenu près de l'élément chauffant, ce qui conduit aussi à un meilleur champ de température.

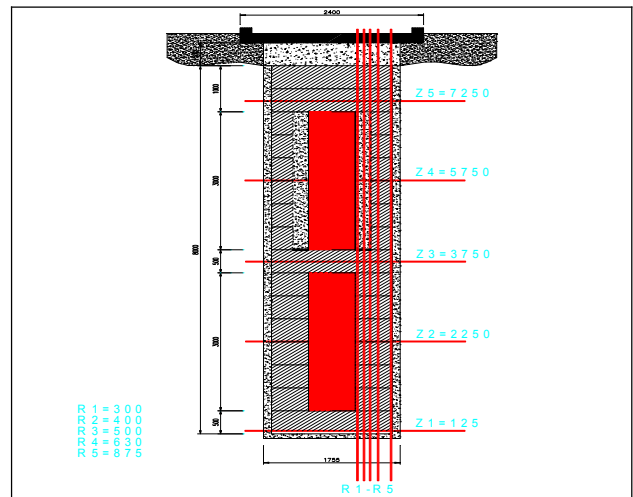


Figure 1. Schéma de l'essai TBT avec les différentes lignes de comparaison entre expérience et simulation

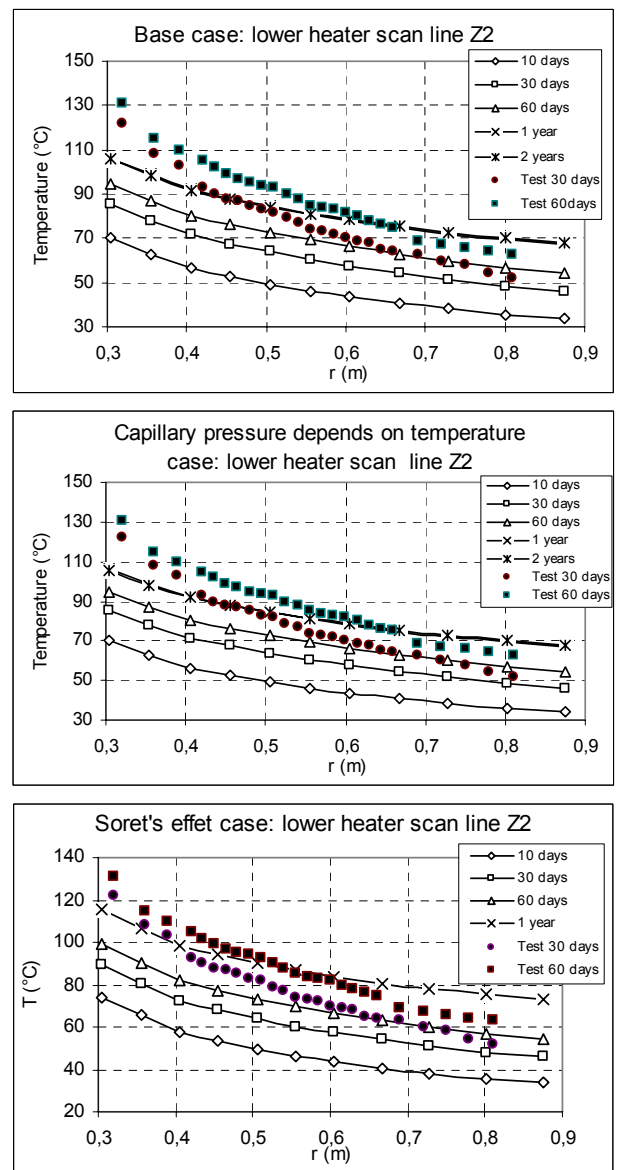


Figure 2. Comparaison des trois cas de simulation de l'essai TBT pour la température T (°C) dans le plan médian en partie basse (anneau complet de bentonite)

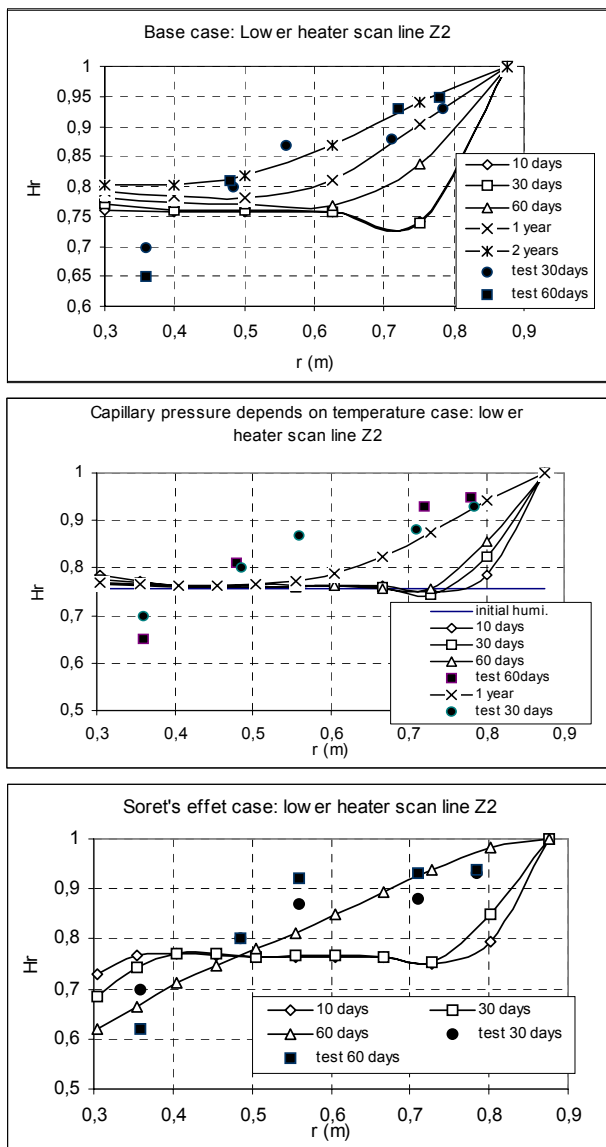


Figure 3. Comparaison des trois cas de simulation de TBT pour l'humidité relative Hr dans le plan médian en partie basse de l'essai (anneau complet de bentonite)

## 5 CONCLUSION ET PERSPECTIVE

L'objectif principal de ce travail était de contribuer à la compréhension du transfert de l'eau dans une barrière ouvragée à base de bentonite pendant un chargement thermique violent. Les différentes approches de modélisation retenues montrent que l'utilisation de la loi de Fick avec une faible valeur du coefficient de diffusion de vapeur d'eau et/ou d'une courbe de pression capillaire fonction de la température ne permettent pas d'obtenir une désaturation significative de la barrière ouvragée au contact de la source chauffante comme observé expérimentalement. L'introduction du mécanisme de transfert d'eau par gradient de température permet un meilleur accord entre la modélisation et l'expérience. Les résultats ainsi obtenus sont similaires à ceux obtenus sans prendre en compte un rôle du gradient de température sur le transfert d'eau mais en considérant des valeurs élevées du coefficient de diffusion de la vapeur.

## REMERCIEMENTS

Les auteurs remercient l'Andra pour son soutien financier et les discussions scientifiques fructueuses qu'ils ont pu avoir tout au long de cette étude, en particulier avec Messieurs Frédéric Plas et Bertrand Vignal. Les auteurs tiennent à souligner le rôle majeur de SKB et de Clay technology, qui ont mis en œuvre l'expérience TBT avec succès. Enfin les auteurs adressent aussi leurs remerciements au CEA, et particulièrement à Monsieur Claude Gatabin, pour la réalisation de la maquette haute température.

## RÉFÉRENCES

- Alonso, E.E., Loret, A., Gens, A., and Yang, D.Q. 1995. Experimental behaviour of highly expansive double structure clay. *In Proc. 1<sup>st</sup> Int. Conf. On Unsaturated Solids*, Paris, vol 1, 11-16.
- Costesque, P. 1985. Sur la migration des éléments par thermodiffusion. Etat et perspectives d'un modèle géochimique *Bull. Minéral* 108 : 305-324.
- Cygan, R.T. and Carrigan, C.R. 1992. Time dependent Soret transport: applications to brine and magma, *Chem. Geol.*, 95, 201-212.
- Gens, A., Garcia-Molina, A., Olivella, S., Alonso, E.E. and Huertas, F. 1998. Analysis of a full scale in situ test simulating repository conditions. *Int. J. Numer. and Anal. Meth. In Geomech* 22, 515-548.
- Grew, K.E. and Ibbs, T.L. 1952. *Thermal diffusion in gases* London Cambridge University Press.
- Hökmark, H. 2003. Temperature buffer test: Comparison of modelling results/experimental findings causes of differences. *Workshop Sites Spain*.
- Jones, R.C. and Furry, W.H. 1946. The separation of isotopes by thermal diffusion. *Rev. Modern Phys.*; 18, 152-224.
- Onsager, L. 1931. Reciprocal relations in irreversible processes I and II *The physical review*. N37 p 405-426 and N 38, 2265-2279.
- Olivella, S. and Gens, A., 2000. Vapour transport in low permeability unsaturated soils with capillary effects. *Transport in porous media* 40: 219-241.
- Prigogine, J. 1968. *Introduction à la thermodynamique des processus irréversibles* [J. Chanu, Trans.] Paris Monographie.
- Robinet, J.C., Rahbaoui, A., Plas, F. and Lebon, P. 1995. A constitutive thermo-mechanical model for saturated clay. *Journal Engineering Geology*, ed. Elsevier, The Netherlands, 145-169.
- Robinet, J.C., Pothier, C. and Jullien, A., 1997. A constitutive model for expansive and non expansive clays. *Numerical models in Geomechanics* Montreal Canada Edt. Balkema pp. 99-104.
- Robinet, J.C., Pakzad, M., Jullien, A. and Plas, F. 1999a. A general modelling of expansive and non expansive clay. *Int. Journal. Numer. Methods in Geomechanics*, 23, 1319-1335.
- Robinet, J.C., Ducoulombier, A. and Plas, F. 1999b. Etude qualitative de codes de calcul THM européens par intercomparaisons, *Revue Française de Génie civil*. Volume 3 n°7-8, 673-691.
- Robinet, J.C., Ducoulombier, A. and Plas, F. 2000. Modélisation THM avec le code Cleo, application à l'essai in situ Bacchus 2, *Revue Française de Génie civil*. Volume 4 n°2-3 /2000, 443-460.
- Sin, G.C., Michopoulos, S.G. and Chou, S.C. 1986. *Hydro-Thermo-Elasticity*. Martinus Nighoff publishers.
- Suzuki, H., Chijimatsu, M. and Fujita, T. 1999. Measurement of water movement under a thermal gradient and swelling pressure of buffer material *Japan Nuclear Cycle Development Institute JNC TN8400* 99-020.
- Takeuchi, S., Hara, K. and Nakano, M. 1995. Water retention curve, water diffusivity and water movement of compacted bentonite. *Soils and Foundations, Journal of the Japanese Geotechnical Society*. Vol 35 No 3, 129-137.
- Thomas, H.R. and Sansom, M.R. 1995. Fully coupled analysis of heat, moisture and air transfer in unsaturated soil. *ASCE J. Enging. Mech*. Vol 121, 392-405.
- Villar, M.V., Fernandez, A.M. and Cuevas, J. 1997. *Full scale engineered barriers experiment in crystalline host rock*, Report 70 IMA-M02, Ciemat, Enresa.