



**HAL**  
open science

# Étude expérimentale et numérique de la durabilité du gypse dans les structures géotechniques : Approche couplée hydro-mécanique et chimique

Thibault Coppée

► **To cite this version:**

Thibault Coppée. Étude expérimentale et numérique de la durabilité du gypse dans les structures géotechniques : Approche couplée hydro-mécanique et chimique. Géotechnique. Université Gustave Eiffel, 2023. Français. NNT : . tel-04492539

**HAL Id: tel-04492539**

**<https://hal.science/tel-04492539>**

Submitted on 6 Mar 2024

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

# THÈSE DE DOCTORAT



## Étude expérimentale et numérique de la durabilité du gypse dans les structures géotechniques

Approche couplée hydro-mécanique et chimique

### Thèse de doctorat de l'Université Gustave EIFFEL

École doctorale n° 531, École Doctorale Sciences, Ingénierie et Environnement  
– SIE

Champ disciplinaire du doctorat : Géomatériaux et Géosciences

Thèse préparée dans l'unité de recherche **GERS-SRO et le laboratoire NAVIER**  
sous la direction de **Myriam DUC**, Chargée de recherche HDR,  
la co-direction de **Amade POUYA**, Directeur de recherche,  
le co-encadrement de **Béatrice BECHET**, Directrice de recherche,

Thèse soutenue à l'Université Gustave EIFFEL, le 29 novembre 2023, par

## Thibault COPPEE

### Composition du jury

Membres du jury avec voix délibérative :

**Michel QUINTARD**, Directeur de recherche émérite, IMFT  
**Céline THOMACHOT-SCHNEIDER**, Professeur des Universités, URCA  
**Farid LAOUAFA** Directeur de recherche, INERIS  
**Fabrice GOLFIER**, Professeur des Universités, Université de Lorraine

Président du jury  
Rapporteuse  
Rapporteur  
Examinateur



« Vis comme si tu devais mourir demain.  
Apprends comme si tu devais vivre toujours »  
Ghandi

## REMERCIEMENTS

Je souhaite remercier l'ensemble des membres de mon jury d'avoir accepté d'évaluer ce travail de doctorat. Merci à Monsieur le président du jury, Patrice GOLFIER, merci à Monsieur QUINTARD d'avoir accepté d'en être l'examineur et merci aux rapporteurs Monsieur LAOUAFA et Mme Céline THOMACHOT-SCHNEIDER.

Je remercie également mes directeurs de thèse, Myriam DUC et Amade POUYA, pour m'avoir permis de faire ce travail de doctorat. Myriam, je te remercie pour tes nombreux conseils, pour m'aider à développer mon travail et à élargir les perspectives. Amade, je vous remercie pour votre temps, votre aide précieuse et votre patience pour le développement de ce modèle. Il n'aurait pu voir le jour sans le partage de vos connaissances profondes en modélisation avec le novice que j'étais. Je remercie également M<sup>me</sup> Béatrice BECHET, du laboratoire LEE. Bien que loin, géographiquement, elle a su prendre le temps de se rendre disponible pour suivre mon travail, me prodiguer ces conseils et apporter un regard neuf sur nos avancées.

Je remercie également Jeanne-Sylvine GUEDON, la première directrice de cette thèse. Je te remercie pour tes conseils, ta patience et ton soutien. Bien que partie vers le monde meilleur de la retraite, tu as toujours su te rendre disponible pour discuter, m'écouter et m'apporter ta bienveillance, un merci infini, cela m'a permis de finir cette thèse malgré bien des périodes difficiles.

Je remercie M Philippe REIFFSTECK, directeur du laboratoire SRO de m'avoir accueilli au sein de son unité pour ces 3 années de thèse. Je tiens à remercier l'ensemble des chercheurs du laboratoire pour leur accueil chaleureux, pour les conseils et les nombreux échanges scientifiques que nous avons pu avoir. J'ai pu m'intégrer parfaitement à la vie du labo et profiter de vos expériences. Une pensée pour Fabien, Christophe et Philippe pour les échanges scientifiques, vos conseils et vos avis critiques. Merci à Yasmina, Etienne, Thibault et Céline. Et évidemment merci à Lamis, pour ses conseils, sa gentillesse.

Merci à Marie-Jo, notre secrétaire qui permet au laboratoire de fonctionner.

Je souhaite aussi remercier les personnes extérieures qui ont contribué par des échanges ou des essais à aider ce travail.

- Monsieur MAUVOISIN, de l'IUT de Rennes pour nos échanges et les essais d'indentation.
- Madame DIDIER, de THINSECTION LAB, pour la réalisation de ces lames de qualités sur des matériaux par toujours facile
- Messieurs BORNERT et AIMEDIEU pour la tomographie

Merci aux personnes et entreprises, dont ROCAMAT et l'entreprise m'ayant fourni les blocs de gypse pour la réalisation de ces expérimentations.

Merci à l'ensemble des techniciens pour leur aide précieuse et leur bonne humeur. Merci à Sonia, Aurore, Franck, Carlos et François. Sans vous, ce serait compliqué de tenir la boutique. Je n'oublie pas les camarades thésards, Juba et Loren pour notre coloc (vu le temps passé dans ce bureau), Badr, Nader, Mara, Marwa, Tianiu et enfin notre gremlins, Dalia.

Merci à ceux du matin pour le café, Carlos, Fabien, Franck, Philippe, Thibault... pour ces débuts de journées animés et joyeux.

Un merci à Patricia et Céline pour m'avoir permis de passer de l'autre côté du pupitre et de m'avoir donné le goût de transmettre nos connaissances.

Une pensée va également pour mes camarades de master et tous ces moments que nous avons passés sur le terrain (géologique et de la vie). Merci Alexis, GOGO, Massi et bien sûr à mon

éternel binôme adorée, que je remercie pour son soutien, ses encouragements et avoir supporté mes excès de mise en page, Sarah ORTONOVI.

Il convient bien sûr de remercier ma famille et mes proches qui m'ont soutenu tout au long de ce parcours. Mes parents pour leurs soutiens et leur aide tout au long de ma vie. Merci au docteur Juliette COPPEE, qui se demande pourquoi son frère joue encore avec des cailloux à son âge. À l'ensemble de ma famille (oncle, tante, cousin et cousine...).

Un gros merci à tous les potes qui m'ont écouté me plaindre pendant ces 3 années autour de ces boissons houblonnées (entre autres). Je vous remercie d'être toujours là et d'endurer mon humour ^^ . Je remercie Clément, Bibiche et le zèbre, Camcam, ma framboise, Fougère et Alexis (ainsi que ma nièce), Alison, Caro, Marie, SonChat, Val, Syrine, Robin, Pierrot, Amélie, Edouard, Martin, Juliette, Guillaume, Flo et Vaness, Vaness et Léo, 112, Flamby, le sergent Noel et tous ceux qui ne peuvent être citer sous peine de faire aussi long que le manuscrit en lui-même, mais qui se reconnaîtront. Merci à vous pour les verres, les concerts et les festivals.

Et enfin merci à Camille, de m'avoir supportée tout au long de cette thèse et surtout de sa rédaction. Merci pour ta patience, de m'avoir soutenu et calmer.

## Résumé

L'extension des activités anthropiques conduit au développement d'infrastructures dans des zones riches en gypse et soumises de ce fait aux aléas mouvement de terrain (glissement) et cavité (tassement/effondrement). Si la cinétique de dissolution de ce matériau fortement soluble (2,5 g/L à 20°C) a fait l'objet de nombreuses études, les propriétés poromécaniques des différents faciès de cette roche restent moins bien connues. Bien que cette roche à faible perméabilité dispose d'une structure poreuse permettant une circulation de fluide, elle est souvent considérée comme imperméable et faisant l'objet d'une simple dissolution par régression de sa surface au contact des fluides environnants, sans formation de gradient d'altération. Ce travail de thèse débute par une caractérisation fine de 6 faciès de gypse dont la porosité totale ( $N_t$ ) est comprise entre 0 et 12% avec des modules élastiques ( $E$ ) de 14 à 36 GPa. L'analyse pétrographique, minéralogique, chimique complétée par des mesures de porosimétrie par intrusion de mercure a permis d'élaborer une classification des faciès gypseux mis en relation avec leur capacité à former des chemins préférentiels lors de la dissolution. Des essais de percolation démontrent ensuite la faisabilité d'un écoulement à travers les roches gypseuses selon le faciès. Le développement de gradient d'altération lié aux effets visible de la dissolution avec l'augmentation des diamètres de pore suivie ou non par l'apparition de chemins préférentiels selon que la taille des pores atteint ou non une valeur seuil en termes de taille. En parallèle, des essais de dissolution sur poudre ont produit des paramètres caractéristiques de la vitesse de dissolution du gypse avec  $n \approx 1,7$  à  $2,7$  et  $\tau_0 \approx 2$  à  $7 \cdot 10^{-2}$  mol/m<sup>2</sup>/sec démontrant le faible impact du faciès sur ces paramètres. La variation des paramètres vitesse d'agitation des suspensions (ou vitesse d'écoulement), température et granulométrie des poudres testées a permis de déterminer respectivement le taux de dissolution à vitesse nulle ( $\tau_0$ ), l'énergie d'activation du processus de dissociation pour les sites de surface des faciès gypseux ( $E_a$ ) et le rôle de la surface spécifique des grains. L'ensemble de ces paramètres chimiques et des paramètres microstructuraux (porosité, diamètre de pore,...) obtenus expérimentalement respectivement sur les poudres et les éprouvettes percolées ont alimenté au final un modèle de prédiction de l'évolution des propriétés mécaniques et hydrauliques des matériaux gypseux en présence d'un processus de dissolution (modélisation Hydro Mécanique et Chimique ou HMC avec couplage des effets). Le modèle a été implémenté avec succès dans le code de calculs aux éléments finis Disroc pour simuler l'évolution à petite échelle des éprouvettes percolées au laboratoire et à plus grande échelle de la stabilité mécanique d'un ouvrage géotechnique soumis à un écoulement de fluide sous saturé, s'infiltrant dans une poche de gypse.

Mots clés : géomatériaux, gypse, altération, modélisation HMC, transport réactif, microstructure, dissolution.

## **Abstract**

The extension of anthropogenic activities leads to the development of infrastructure in areas rich in gypsum and therefore subject to the hazards of land movement (sliding) and cavities (settling/collapse). If the dissolution kinetics of this highly soluble material (2.5 g/L at 20°C) have been the subject of numerous studies, the poromechanical properties of the different facies of this rock remain less well known. Although this low permeability rock has a porous structure allowing fluid circulation, it is often considered impermeable and subject to simple dissolution by regression of its surface in contact with surrounding fluids, without formation of gradient alteration. This thesis work begins with a fine characterization of 6 gypsum facies whose total porosity ( $N_t$ ) is between 0 and 12% with elastic moduli ( $E$ ) from 14 to 36 GPa. The petrographic, mineralogical and chemical analysis supplemented by porosimetry measurements by mercury intrusion made it possible to develop a classification of gypsum facies linked to their capacity to form preferential paths during dissolution. Percolation tests then demonstrate the feasibility of flow through gypsum rocks depending on the facies. The development of alteration gradient linked to the visible effects of dissolution with the increase in pore diameters followed or not by the appearance of preferential paths depending on whether or not the pore size reaches a threshold value in terms of size. In parallel, dissolution tests on powder produced parameters characteristic of the dissolution rate of gypsum with  $n \approx 1.7$  to 2.7 and  $\tau_0 \approx 2$  to  $7.10^{-2}$  mol/m<sup>2</sup>/sec demonstrating the low impact of facies on these parameters. The variation of the parameters agitation speed of the suspensions (or flow speed), temperature and particle size of the powders tested made it possible to determine respectively the dissolution rate at zero speed ( $\tau_0$ ), the activation energy of the process of dissociation for gypsum facies surface sites ( $E_a$ ) and the role of specific grain surface area. All of these chemical parameters and microstructural parameters (porosity, pore diameter, etc.) obtained experimentally respectively on the powders and the percolated specimens ultimately fed into a model for predicting the evolution of the mechanical and hydraulic properties of gypsum materials. in the presence of a dissolution process (Hydro Mechanical and Chemical modeling or HMC with coupling of effects). The model was successfully implemented in the Disroc finite element calculation code to simulate the evolution on a small scale of specimens percolated in the laboratory and on a larger scale of the mechanical stability of a geotechnical structure subjected to a fluid flow under saturated, seeping into a pocket of gypsum.

Key words: geomaterials, gypsum, alteration, HMC modeling, reactive transport, microstructure, dissolution.



Introduction générale.....	1
1) Faciès du gypse et propriétés physiques (pétrophysiques ?, hydromécaniques ?)	4
2) Étude expérimentale du processus et de la cinétique de dissolution du gypse...	5
3) Plan du manuscrit .....	6
Chapitre 1 : État de l'art sur le gypse, ses propriétés et son altération.....	8
A. Le gypse, genèse et aléa .....	10
I. Formation et localisation du gypse.....	10
II. Morphologie et cristallographie du gypse .....	14
1) Structure cristallographique.....	14
2) Précipitation du gypse.....	15
3) Variabilité des faciès.....	17
III. Les aléas liés à la présence de gypse,.....	19
1) Aléa cavité : les effondrements et affaissements liés aux cavités .....	19
2) Aléa mouvement de terrain.....	21
a) Le rôle du gypse dans les glissements de terrain .....	21
b) Glissement de Roquebillière (Var) en 1926.....	21
c) Glissement du Lamet (Mont-Cenis).....	22
B. La dissolution du gypse.....	24
I. Solubilité du gypse .....	24
1) Notion de force et d'activité ionique .....	26
2) Effet de la température sur la solubilité du gypse.....	27
3) Effet de la pression sur la solubilité du gypse .....	29
4) Effet du pH sur la solubilité du gypse .....	30
5) Effet de la granulométrie sur la cinétique de dissolution du gypse .....	30
6) Effet de compétition de quelques minéraux sur la solubilité du gypse .....	31
a) Calcite .....	31
b) Halite.....	31
c) Dolomie.....	32
II. Régime de dissolution du gypse .....	33
1) Détermination des constantes de dissolution du gypse.....	35
2) Effet de la vitesse sur la cinétique de dissolution .....	36
3) Effet de la température sur la cinétique de dissolution.....	38
III. Dissolution non homogène des masses rocheuses.....	38
4) Définition du phénomène de « whormhole » .....	38
5) Mécanisme gouvernant l'initiation des chemins préférentiels .....	39
C. Propriétés poromécaniques du gypse .....	42
I. Comportement rhéologique du gypse.....	43
1) Définition et identification du comportement du gypse. ....	43
2) Modèle de Mohr Coulomb.....	45
3) Comportement différé du gypse (fluage).....	46
II. Propriétés poromécaniques du gypse .....	51

1)	Relation entre porosité et résistance mécanique .....	51
2)	Détermination des principaux paramètres mécaniques .....	54
III.	Effet de la granulométrie sur la résistance mécanique .....	55
IV.	Perméabilité du gypse .....	56
V.	Étude de l'altération du gypse .....	57
D.	État de l'art sur les modèles HMC .....	61
I.	Modélisation des milieux poreux .....	62
Introduction	.....	62
1)	Généralités sur les milieux poreux .....	63
2)	Milieu poreux continu à l'échelle macroscopique.....	64
3)	Notions de porosité.....	64
4)	Principe de contrainte effective .....	65
II.	Modélisation d'écoulement monophasique.....	66
1)	Première loi de la thermodynamique .....	67
2)	Deuxième loi de la thermodynamique .....	67
3)	Principe de la conservation de masse .....	67
III.	Loi d'écoulement à échelle microscopique et macroscopique .....	68
1)	Loi d'écoulement monophasique à l'échelle du pore .....	68
2)	Loi d'écoulement monophasique à l'échelle macroscopique.....	68
3)	Relation porosité-perméabilité.....	68
4)	Exemple de génération d'un milieu poreux.....	69
5)	Modélisation géochimique.....	71
IV.	Exemple de couplages Hydro-Chimiques (HC) et Hydro-Méca-Chimiques (HMC) 72	
1)	Modèle Hydro-chimique de la dissolution du gypse et le développement karstique. ....	73
2)	Couplage Hydro-chimique du gypse par la Méthode d'Interface Diffuse (DIM) 74	
3)	Couplage Hydro-mécano-chimique pour le stockage du CO <sub>2</sub> .....	77
4)	Couplage THM+C pour le stockage de déchets radioactifs .....	80
E.	Conclusions .....	84
Chapitre 2 :	matériaux et méthodes.....	85
A.	Matériaux d'étude .....	87
I.	Description des formations étudiées.....	87
1)	Le gypse du sud-Est de la France .....	87
a)	Le gypse orogénique .....	88
b)	Gypse saccharoïde à interlits .....	89
2)	Le gypse du bassin de Paris .....	89
a)	Gypse des marnes et caillasses du Lutétien .....	90
b)	Gypse albastroïde.....	92
c)	Gypse fer de lance.....	93
d)	Les masses et marnes du gypse du Priabonien .....	93
e)	Gypse saccharoïde pur .....	96
f)	Gypse matriciel .....	97

B.	Méthodes et protocoles .....	98
I.	Identification et quantification minéralogique .....	98
1)	Diffraction des rayons X.....	98
2)	Pétrographie.....	99
II.	Pétrophysique .....	100
1)	Classification de la porosimétrie .....	100
2)	Porosimétrie à l'eau .....	102
a)	Détermination de la porosité totale ( $N_t$ ) .....	102
b)	Détermination de la porosité accessible ( $N_{48}$ ) et de la porosité piégée ( $N_p$ ) 103	
c)	Détermination de la porosité fissurale( $N_{pore}$ ) et de la porosité porale( $N_{fiss}$ ) 104	
3)	Porosimétrie mercure.....	105
a)	Principe de l'essai .....	105
b)	Réalisation de l'essai.....	106
c)	Écart entre porosité à l'eau et porosité mercure.....	108
III.	Caractérisation du transfert de fluide dans une matrice poreuse.....	109
1)	Cinétique d'imbibition capillaires .....	109
a)	Les transferts capillaires .....	109
b)	Equation de Washburn (1921) .....	110
c)	Relation entre imbibition capillaire et structure des pores .....	111
2)	La perméabilité à l'eau .....	112
a)	Cadre général .....	112
b)	Limitation de la loi de Darcy pour les faibles gradients de pression .....	112
c)	Limitation de la loi de Darcy pour les forts gradients de pression .....	113
3)	Protocole de mesure de la perméabilité à l'eau .....	113
IV.	Paramètre mécanique.....	114
1)	Résistance en compression .....	114
2)	Vitesse du son.....	115
3)	Fréquence de résonance.....	116
4)	Comparaison entre vitesse du son et fréquence de résonance .....	118
C.	Montages et protocoles expérimentaux.....	118
I.	Étude des cinétiques de dissolution de poudre de gypse.....	118
1)	Principe de l'essai .....	118
2)	Traitement des résultats .....	120
3)	Surface spécifique.....	120
II.	Essai de percolation.....	123
III.	Essai de dissolution sur disque plan de gypse .....	125
IV.	Développement d'un essai de dissolution sur plaque.....	127
D.	Conclusions .....	128
Chapitre 3 Résultats expérimentaux.....		130
Introduction .....		132
A.	Caractérisation des gypses étudiés .....	133
I.	Caractérisation minéralogique des faciès gypseux.....	133

II.	Caractérisation de la porosité .....	135
1)	Observation pétrographique des gypses étudiés et de leur porosité .....	136
2)	Mesure de la porosité à l'eau .....	144
3)	Mesure de la porosité par intrusion de mercure (PIM).....	146
4)	Mesure du coefficient d'imbibition capillaire ( $C_1$ ).....	148
III.	Propriétés mécaniques des faciès gypseux étudiés.....	152
1)	Essai de compression .....	152
2)	Investigation non destructive du module d'élasticité .....	152
a)	Détermination des modules d'élasticité dynamique ( $E_{dyn}$ ) et modale ( $E_{mod}$ ) 153	
b)	Relation entre module élastique et porosité .....	155
IV.	Conclusions .....	157
B.	Résultats sur l'altération du gypse .....	159
I.	Suivi du taux d'altération et de la minéralogie du gypse avec la percolation .....	160
1)	Évaluation du taux d'altération (perte de matière) avec le temps .....	161
a)	Gypse matriciel .....	161
b)	Gypse saccharoïde pur .....	162
c)	Gypse saccharoïde à interlits .....	164
2)	Synthèse .....	165
II.	Évolution minéralogique .....	167
1)	Gypse matriciel .....	167
2)	Gypse saccharoïde pur .....	167
3)	Gypse saccharoïde à interlits .....	167
III.	Évolution de la porosité des gypses étudiés .....	169
1)	Gypse matriciel .....	169
a)	Évolution de la porosité .....	169
b)	Évolution de la perméabilité .....	174
c)	Évolution pétrographique.....	176
2)	Gypse saccharoïde pur .....	179
a)	Évolution de la porosité .....	179
b)	Évolution de la perméabilité .....	181
c)	Évolution pétrographique.....	182
3)	Gypse saccharoïde à interlits .....	184
a)	Évolution de la porosité .....	184
b)	Évolution pétrographique.....	186
IV.	Évolution mécanique .....	189
1)	Évolution de la résistance en compression .....	189
2)	Évaluation des modules élastiques par des mesures non destructives.....	190
a)	Suivi de l'évolution des modules d'élasticités par méthodes non destructives 190	
b)	Relation entre module d'élasticité dynamique ( $E_{dyn}$ ) et porosité.....	192
V.	Conclusions .....	194
C.	Résultats de l'étude des cinétiques de dissolution .....	195
	Introduction.....	195

I.	Essai de dissolution sur poudre .....	196
1)	Relation entre conductimétrie et concentration en gypse dissous .....	197
2)	Mesure de la surface spécifique des poudres à l'analyseur BET <sub>N2</sub> .....	198
3)	Détermination des cinétiques à 25°C.....	200
4)	Effet de la température sur la cinétique de dissolution.....	203
5)	Effet de la vitesse d'agitation sur la cinétique de dissolution.....	205
6)	Effet de la granulométrie .....	206
II.	Évolution des surfaces de dissolution.....	209
1)	Essai de dissolution sur disque .....	209
a)	Taux de dissolution .....	209
b)	Évolution de la surface dissoute .....	211
III.	Essai de dissolution sur plaque.....	214
1.	Gypse matriciel .....	214
2.	Gypse saccharoïde à interlits .....	216
3.	Gypse saccharoïde pur .....	217
D.	Discussion des résultats partie caractérisation .....	218
E.	Conclusion du chapitre 3.....	220
Chapitre 4 Modélisation numérique .....		225
A.	Présentation du modèle HMC proposé .....	228
I.	Description des équations développées .....	228
1)	Dissolution dans Disroc .....	228
2)	Dissolution par diffusion .....	228
3)	Dissolution par transport réactif .....	228
II.	Détermination des paramètres de dissolution.....	229
1)	Détermination du nombre de pore et de la surface réactionnelle ( $S_{c0}$ ).....	230
2)	Évolution de la dissolution avec la vitesse d'écoulement de surface .....	230
3)	Évolution de la porosité .....	232
4)	Évolution de la perméabilité.....	233
5)	Effet de la dissolution sur les propriétés mécaniques .....	233
B.	Résultats de la modélisation numérique.....	235
I.	Simulation d'un éprouvette sous percolation .....	235
1)	Présentation du modèle .....	235
2)	Résultats.....	236
a)	Éprouvette avec une porosité uniforme .....	236
b)	Variabilité des paramètres.....	238
c)	Résultat pour une éprouvette avec une porosité hétérogène .....	240
II.	Évolution d'une structure géotechnique sur du gypse.....	242
1)	Description du modèle .....	242
2)	Résultats.....	244
a)	Initiation de la dissolution et progression de la perturbation chimique .....	244
b)	Évolution en partie basale de la couche de gypse.....	247
C.	Conclusions .....	256
Conclusion générale et perspectives.....		257

BIBLIOGRAPHIE .....	266
ANNEXE .....	294
I. Annexes du chapitre 1 .....	295
Annexe 1.A : Une brève histoire du Bassin parisien .....	295
a) Trias (-252 à -201 Ma) .....	296
b) Jurassique (- 201 à 145 Ma) .....	296
c) Crétacé (-145 à -66 Ma) .....	296
d) Paléogène (-66 à 23 Ma) .....	296
e) Néogène (-23 à 2,5 Ma) .....	296
f) Quaternaire (Depuis 2,5 Ma) .....	296
Annexe 1.B : Échelle chrono stratigraphique .....	298
Annexe 1.C : Aléas cavités du gypse .....	299
1) Exploitation et effondrement de carrière souterraine .....	299
a) Les galeries .....	299
b) Aléa cavité dans les exploitations de gypse .....	301
2) Spéléogénèse dans le gypse .....	302
a) Localisation du phénomène .....	302
b) Le parakarst du gypse .....	302
c) Spéléogénèse par infiltration (phréatique) .....	304
d) Spéléogénèse en conditions confinées (artésien) .....	304
e) Estimation des taux de régression dans le gypse .....	305
Annexe 1.D : Tableau donnant les calculs pour la détermination de la perméabilité en fonction de la géométrie d'après le coefficient de Kozeny Carman .....	306
Annexe 1.E : Interaction chimique du modèle HC de A guila .2022 .....	307
II. Annexes du chapitre 2 .....	308
Annexe 2.A : Sondage BSS002BREA .....	308
Annexe 2.B : Sondage « PSM-AVP-SC4244 » .....	309
Annexe 2.C : Sondage RSB-AVP-SC04200fer de lance .....	310
III. Annexe Chapitre 3 .....	311
Annexe 3.A débit des cellules de percolation .....	311
1) Débit des éprouvettes de gypse matriciel pur lors de l'essai de percolation ..	311
2) Débit des éprouvettes de gypse saccharoïde pur lors de l'essai de percolation	312
3) Débit des éprouvettes de gypse saccharoïde à interlits lors de l'essai de percolation .....	313
Annexe 3.B : Détermination des indices de continuités .....	314
Annexe 3.C : Résultats de la porosimétrie par intrusion de mercure .....	314
1) Gypse matriciel .....	314
2) Gypse saccharoïde pur .....	316
3) Gypse saccharoïde à interlits .....	317
Annexe 3.D : Coefficient d'imbibition capillaire .....	318
Annexe 3.E : Évolution de la vitesse du son .....	319



## Liste des figures

FIGURE 1 ÉVOLUTION DE LA PRODUCTION FRANÇAISE DE GYPSE. SOURCE (MARTEAU, 1993) ET UNITED STATES GEOLOGICAL SURVEY (USGS) <a href="https://www.usgs.gov/centers/national-minerals-information-center/gypsum-statistics-and-information">HTTPS://WWW.USGS.GOV/CENTERS/NATIONAL-MINERALS-INFORMATION-CENTER/GYPSUM-STATISTICS-AND-INFORMATION</a>	2
FIGURE 2 PHOTOGRAPHIE DE REMONTÉE DE FONTIS DANS LE GYPSE. (A) EFFONDREMENT DE FONTIS À ROQUEVAIRE (13) (CEREMA, 2018). (B) AFFAISSEMENT DE LA CHAUSSÉE DE L'A15 (CEREMA, 2021). (C) ET (D) REMONTÉE DE FONTIS EN RÉGION PARISIENNE (LECOMTE, 2022) ET (DIRECTION RÉGIONALE DE L'INDUSTRIE, DE LA RECHERCHE ET DE L'ENVIRONNEMENT, 1995)	2
FIGURE 3 LOG STRATIGRAPHIQUE SYNTHÉTIQUE DES FORMATIONS GÉOLOGIQUES DE LA RÉGION PARISIENNE. ZAIER, 2021	3
FIGURE 4 SCHÉMA DE LA DISSOLUTION DU GYPSE PAR PERCOLATION LE LONG D'UNE FISSURE (A) ET PAR UN ÉCOULEMENT SOUS SATURÉE (B) CONDUISANT À LA FORMATION DE CAVITÉ (CHARMOILLE AND LECOMTE, 2018).	4
FIGURE 5 SCHÉMA DES CHÂÎNES DE MODULE DE CALCUL DU LOGICIEL DISROC.	5
FIGURE 6: PRINCIPAUX GISEMENTS DE GYPSE EN FRANCE ET DE LEUR EXPLOITATION (CHARMILLE ET LECOMTE, 2018)	11
FIGURE 7. GISEMENTS GYPSIFÈRES D'ÂGE PRÉCAMBRIEN ET PALÉOZOÏQUE (KLIMCHOUK ET AL. 1996).	11
FIGURE 8 : SCHÉMA DE LA DIAGENÈSE DU GYPSE ET SÉQUENCE DE PRÉCIPITATION DES ÉVAPORITES. SOURCE: <a href="http://WWW.GGL.UVALA.CA">WWW.GGL.UVALA.CA</a>	11
FIGURE 9. SÉRIE ÉVAPORITIQUE COMPLÈTE DE L'EAU DE MER. D'APRÈS (DECONINCK ET AL., 2016)	12
FIGURE 10 SCHÉMA DE DIFFÉRENTES HYPOTHÈSES EXPLIQUANT LA PRÉCIPITATION D'IMPORTANTES MASSES DE GYPSSES. D'APRÈS (DECONINCK ET AL., 2016)	13
FIGURE 11 : STRUCTURE CRISTALLOGRAPHIQUE DU GYPSE (CASELLE ET AL., 2022)	14
FIGURE 12 : STRUCTURE ACICULAIRE D'UN CRISTAL DE GYPSE (BOSBACH AND RAMMENSEE, 1994)	14
FIGURE 13 SCHÉMA DES THÉORIES CLASSIQUES ET NON CLASSIQUES DE NUCLÉATION. SOURCE (GEBAUER AND CÖLFEN, 2011)	15
FIGURE 14 EFFET DU DEGRÉ DE SURSATURATION SUR LE TYPE DE NUCLÉATION ET LA DURÉE D'INDUCTION (VOIR GLOSSAIRE) POUR DIFFÉRENTES COMPOSITIONS D'EAU DE MER. SOURCE (REZNIK ET AL., 2012)	16
FIGURE 15 DIVERSES MORPHOLOGIES DE CRISTAL DE GYPSE PRÉCIPITÉ DANS UN LAC ASSÉCHÉ. SOURCE (MEES ET AL., 2012)	18
FIGURE 16 LES PRINCIPAUX FACIÈS DE GYPSE D'ILE DE FRANCE OBSERVÉ SUR LES ÉCHANTILLONS PRÉLEVÉS ET TESTÉS DANS CE MANUSCRIT DE THÈSE. A : GYPSE MATRICIEL, B : GYPSE SACCHAROÏDE PUR DE PARIS, C : GYPSE SACCHAROÏDE À INTERLITS, D GYPSE ALBASTROÏDE, E GYPSE FER DE LANCE, F : GYPSE ISSU D'UNE NAPPE DE CHARRIAGE (TOULONNAIS).	18
FIGURE 17 CARTE DES ZONES D'EXPLOITATION DU GYPSE CONNUES EN ILE DE FRANCE. SOURCE INSPECTION GÉNÉRALE DES CARRIÈRES <a href="https://capggeo.maps.arcgis.com/apps/embed/index.html?webmap=53ECE42B40E746E3872C21BD291A9227&amp;extent=2.0256,48.712,2.7013,48.9895&amp;zoom=true&amp;previewimage=false&amp;scale=true&amp;legend=true&amp;disable_scroll=true&amp;theme=ligh">HTTPS://CAPGEO.MAPS.ARCGIS.COM/APPS/EMBED/INDEX.HTML?WEBMAP=53ECE42B40E746E3872C21BD291A9227&amp;EXTENT=2.0256,48.712,2.7013,48.9895&amp;ZOOM=TRUE&amp;PREVIEWIMAGE=FALSE&amp;SCALE=TRUE&amp;LEGEND=TRUE&amp;DISABLE_SCROLL=TRUE&amp;THEME=LIGH</a>	20
FIGURE 18 CARTE DES PRINCIPAUX ALÉAS DANS LE GYPSE EN FRANCE ET EN PROVENCE. SOURCE (CHARDON AND NICOD, 1996)	21
FIGURE 19 A : PROFIL DU GLISSEMENT DE TERRAIN DE ROQUEBILLIÈRE. SOURCE (JULIAN AND NICOD, 1990). B : PHOTOGRAPHIE DU GLISSEMENT. SOURCE : (RIVET ET AL., 2012)	22
FIGURE 20 CARTE GÉOLOGIQUE SIMPLIFIÉE DU GLISSEMENT DU LAMET. MODIFIÉ D'APRÈS (BORDET AND DELETIE, 1979)	22
FIGURE 21 PROFIL DU GLISSEMENT DE TERRAIN DU LAMET. D'APRÈS (BORDET AND DELETIE, 1979)	23
FIGURE 22 CORRÉLATION ENTRE PIÉZOMÉTRIE ET VITESSE DE GLISSEMENT. SOURCE (FABRE ET AL., 2015) AVEC NP : NIVEAU PIÉZOMÉTRIQUE, V : VITESSE DE GLISSEMENT (MM/AN), T : TEMPS EN ANNÉES	23
FIGURE 23 : SOLUBILITÉ DES SELS EN FONCTION DE LA TEMPÉRATURE.(DEOCAMPO AND JONES, 2014)	25
FIGURE 24 EFFET DE LA FORCE IONIQUE SUR LA SOLUBILITÉ DU GYPSE. D'APRÈS BOCK, (1961)	27
FIGURE 25 : SOLUBILITÉ DU GYPSE EN FONCTION DE LA TEMPÉRATURE. (SHEN ET AL., 2020B)	28
FIGURE 26 : VARIATION DE LA SOLUBILITÉ DU GYPSE EN FONCTION DE LA PRESSION. D'APRÈS(BLOUNT AND DICKSON, (1973)	29
FIGURE 27 : EVOLUTION DE LA SOLUBILITÉ DU GYPSE DANS L'EAU PURE EN FONCTION DE LA PRESSION À 0, 25 ET 40°C. « EXP » : VALEURS EXPÉRIMENTALES. « THIS STUDY » : COURBE DE TENDANCE EN DÉCOULANT ET « PREVIOUS » LA COURBE THÉORIQUE DU MODÈLE DE KASSA, (1998). SOURCE (DAI ET AL., 2017B)	29
FIGURE 28 : SOLUBILITÉ DU GYPSE À 35°C AVEC DES CONCENTRATIONS DE NA CL ET À PH VARIABLE.(SHUKLA ET AL., 2008)	30



FIGURE 29 EFFET DE LA GRANULOMÉTRIE SUR LA SOLUBILITÉ DU GYPSE À 25°C. D'APRÈS (LEBEDEV AND KOSORUKOV, 2017)	31
FIGURE 30 EFFET DE LA PRÉSENCE DE CALCIUM EN SOLUTION SUR LA DISSOLUTION DU GYPSE. (ZAIER ET AL., 2022)	31
FIGURE 31 ÉVOLUTION DE LA SOLUBILITÉ DU GYPSE POUR DIFFÉRENTES CONCENTRATIONS EN NACL ET TEMPÉRATURES. SOURCE (REISS ET AL., 2021)	32
FIGURE 32 EFFET DE LA PRÉSENCE DE MAGNÉSIUM EN SOLUTION SUR LA SOLUBILITÉ DU GYPSE. D'APRÈS (REISS ET AL., 2021)	32
FIGURE 33 : DISSOLUTION DE GYPSE PAR ESSAI BATCH. SOURCE (JESCHKE ET AL., 2001A)	33
FIGURE 34 : SCHÉMA DU PROCESSUS DE DISSOLUTION AVEC LA COUCHE LIMITE.(COLOMBIANI, 2008)	34
FIGURE 35 DÉTERMINATION DE LA CONSTANTE DE DISSOCIATION ET DE L'ORDRE CHIMIQUE DE LA RÉACTION DE LA DISSOLUTION DU GYPSE. (JESCHKE ET AL., 2001A)	35
FIGURE 36 RELATION ENTRE LE TAUX DE DISSOLUTION ET L'ÉPAISSEUR DE LA COUCHE LIMITE. D'APRÈS COLOMBANI (2012). $C_{BULK}$ : CONCENTRATION DANS LA COUCHE LIMITE.	36
FIGURE 37 RELATION ENTRE TAU DE DISSOLUTION ET VITESSE DE ROTATION. (RAINES AND DEWERS, 1997)	37
FIGURE 38 EFFET DE LA TEMPÉRATURE SUR LA CONSTANTE DE DISSOLUTION DU GYPSE EN FONCTION DE LA TEMPÉRATURE. (ZAIER, 2021)	38
FIGURE 39 EXEMPLE DE CHEMINS PRÉFÉRENTIELS.	39
FIGURE 40 RADIOGRAPHIE DES DIFFÉRENTS TYPES DE CHEMINS PRÉFÉRENTIELS (GOLFIER, 2001)	40
FIGURE 41 A : ÉVOLUTION DU VOLUME INJECTÉ POUR DIFFÉRENTS DÉBIT. B : ÉVOLUTION DU VOLUME INJECTÉ EN FONCTION DU NOMBRE DE DAMKHÖLER. SOURCE (FREDD AND FOGLER, 1998)	41
FIGURE 42 ÉVOLUTION DE LA POROSITÉ ET DE LA PERMÉABILITÉ POUR DIFFÉRENTS PE ET DA. SOURCE (KANG ET AL., 2014)	42
FIGURE 43 : DIAGRAMME MONTRANT LES COURBES TYPIQUES DE CONTRAINTE DIFFÉRENTIELLE- DÉFORMATION AXIALE ET DE DÉFORMATION VOLUMÉTRIQUE-DÉFORMATION AXIALE DES ESSAIS DE COMPRESSION TRIAXIALE POUR LES ROCHES CASSANTES (A) ET LES ROCHES DUCTILES (B) (WU ET AL., 2021)	44
FIGURE 44 : VISUALISATION AU MEB DE LA RUPTURE TABULAIRE DU GYPSE (ZHU YANBO ET AL., 2021)	45
FIGURE 45 ESSAI DE FLUAGE SOUS CHARGEMENT CONSTANT EN ATMOSPHÈRE HUMIDE À 90% DU GYPSE DE LIVRY-GARGAN (À GAUCHE) ET DE GROZON (À DROITE). (AUVRAY, 2003)	47
FIGURE 46 RÉSULTATS DE L'ÉQUATION 1.C.8 POUR AJUSTER LES RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX DE ZHU YANBO ET AL., (2021)	49
FIGURE 47 EFFET DU TAUX DE CHARGEMENT SUR LE DÉLAI DE RUPTURE. (MASSIEU, 1996) AVEC A : DÉFORMATION ÉLASTIQUE INSTANTANÉE, B : PHASE DE FLUAGE TRANSITOIRE ( $\approx 100$ JOURS), C : PHASE DE FLUAGE STABLE (À VITESSE CONSTANTE), D : PHASE DE FLUAGE ACCÉLÉRÉ, TRÈS DÉVELOPPÉE.	50
FIGURE 48: IMPACT DU CONTEXTE TECTONIQUE SUR LA POROSITÉ DU GYPSE (AUVRAY, 2003)	51
FIGURE 49 RELATION ENTRE RÉSISTANCE EN COMPRESSION ET POROSITÉ DU GYPSE D'APRÈS LA LITTÉRATURE	53
FIGURE 50 EFFET DE LA SATURATION SUR LA RÉSISTANCE EN COMPRESSION DU GYPSE (MASSIEU, 1992).	54
FIGURE 51 RELATION ENTRE MODULE D'ÉLASTICITÉ ET RÉSISTANCE EN COMPRESSION (GIAMBASTIANI, 2005)	55
FIGURE 52 RELATION ENTRE LA RÉSISTANCE MÉCANIQUE ET LES PARAMÈTRES GRANULOMÉTRIQUES. D'APRÈS (CASELLE ET AL., 2019)	56
FIGURE 53 PERMÉABILITÉ DES ROCHES ET CLASSIFICATION DE LA PERMÉABILITÉ (GÉRAUD, 2000)	57
FIGURE 54 DÉGRADATION DE LA RÉSISTANCE EN COMPRESSION ET DÉPLACEMENT SOUS CONTRAINTE D'ÉPROUVETTES DE GYPSE. D'APRÈS(CASTELLANZA RICCARDO ET AL., 2010)	57
FIGURE 55 MISE EN ÉVIDENCE DE GRADIENT D'ALTÉRATION DANS LES PILIERS DE LA CARRIÈRE DE LIVRY-GARGAN SELON L'ÂGE D'EXPLOITATION. D'APRÈS (AUVRAY, 2003)	58
FIGURE 56 ÉVOLUTION DES ÉPROUVETTES SOUMISES À LA DISSOLUTION DANS LA CARRIÈRE DE ROQUEVAIRE. (BERTOLUS ET AL., 2017)	59
FIGURE 57 RÉDUCTION DE LA RÉSISTANCE À LA COMPRESSION AVEC LA DISSOLUTION ET DE LA SATURATION. (BERTOLUS ET AL., 2017)	59
FIGURE 58 DIAGRAMME DES TAUX DE RÉCESSION MESURÉ EXPÉRIMENTALEMENT EN FONCTION DES MÉTHODES ET LOCALISATION DES ESSAIS. MODIFIÉ D'APRÈS (KLIMCHOUK ET AL., 1996C).	60
FIGURE 59 DIAGRAMME DES PROCESSUS DE DÉGRADATION DES GÉOMATÉRIAUX ET COUPLAGES ENTRE PROCESSUS. (TSANG, 1991)	62
FIGURE 60 ILLUSTRATION DES DIFFÉRENTES ÉCHELLES DE MODÉLISATION EN MODÉLISATION.(GUO ET AL., 2016)	63
FIGURE 61 ILLUSTRATION DES APPROCHES LAGRANGIENNE ET EULÉRIENNE EN MODÉLISATION (OURAGA AND LAOUAFA, 2020)	65

FIGURE 62 RELATION ENTRE LE COEFFICIENT DE BIOT ET LA POROSITÉ (BEMER, E. ET AL., 2004)	66
FIGURE 63 ÉVOLUTION DE LA POROSITÉ (À GAUCHE) ET DE LA CONDUCTIVITÉ HYDRAULIQUE (À DROITE) DANS LE GYPSE POUR UNE SIMULATION D'UNE DURÉE DE 1 000 ANS POUR DIFFÉRENTES RELATIONS ENTRE POROSITÉ ET PERMÉABILITÉ (ÁGUILA ET AL. 2022).	69
FIGURE 64 PRINCIPE DE PIPE-BUNDLE. (HA, 2012)	70
FIGURE 65 MODÈLE DE CELLULES RÉACTIVES EN CASCADE DANS LE CODE PHREEQC - COUPLAGE ENTRE RÉACTIONS GÉOCHIMIQUES LIQUIDE-SOLIDE-GAZ ET TRANSPORT DE MASSE EN 1D (THIÉRY, 2016)	71
FIGURE 66 RELATIONS DANS LES COUPLAGES THMC. (RÛHAAK ET AL., 2015)	73
FIGURE 67 ÉVOLUTION DE LA POROSITÉ DANS LE SCÉNARIO 1 DE ÁGUILA ET AL., (2022).	74
FIGURE 68 REPRÉSENTATION SCHÉMATIQUE DE LA ZONE D'INTERFACE DIFFUSE. (GUO ET AL., 2016)	75
FIGURE 69 EXEMPLE DE DISSOLUTION D'UNE LENTILLE DE GYPSE PAR LE MODÈLE DIM. A : SCHÉMA DU MODÈLE ÉLABORÉ À L'ÉTAT INITIAL. B : EFFET DE LA DISSOLUTION SUR LE VOLUME DE GYPSE INITIAL. C,D ET E : ÉVOLUTION DE LA LENTILLE DE À 3, 15 ET 30 ANS. D'APRÈS (GUO ET AL., 2016)	77
FIGURE 70 EVOLUTION DE MODULE D'INCOMPRESSIBILITÉ DRAINÉ ( $K_D$ ) ET DU MODULE DE CISAILLEMENT (G) DU CALCAIRE EN FONCTION DE LA POROSITÉ.	79
FIGURE 71 MODÉLISATION DU PHÉNOMÈNE D'ALBITISATION SUR 30 000 ANS. A : GÉOMÉTRIE ET CONDITION INITIALES. B : EVOLUTION MÉCANIQUE DU MASSIF À 30 000 ANS. C : EVOLUTION DE LA PERMÉABILITÉ ET DE LA TEMPÉRATURE APRÈS 30 000 ANS. D : DISTRIBUTION DE L'ALBITE. D'APRÈS (POULET ET AL., 2012).	82
FIGURE 72 CARTE DE LA FRANCE À LA FIN DU KEUPER (DELFAU, 1974)	87
FIGURE 73 COUPE GÉOLOGIQUE SCHÉMATIQUE DE LA RÉGION DONT SONT ISSUS LES ÉCHANTILLONS DE GYPSE SACCHAROÏDE À INTERLITS. D'APRÈS LES COUPES DE CARTE GÉOLOGIQUE DE LARAGNE-MONTGÉLIN (1/50 000) (893). GIDON ET AL., 1991	88
FIGURE 74 PHOTOGRAPHIE DES SONDAGES UTILISÉS POUR LA RÉALISATION DES ÉPROUVETTES.	88
FIGURE 75 CAROTTE RÉALISÉE DANS LE GYPSE SACCHAROÏDE À INTERLITS	89
FIGURE 76 LOG GÉOLOGIQUE SIMPLIFIÉ ET LOCALISATIONS DES GISEMENTS DE GYPSES EN ILE-DE-FRANCE. AQ : NIVEAU AQUIFÈRE. MODIFIÉ D'APRÈS (ZAIER ET AL., 2021) ET DONNÉES DE LA BDLISA.	90
FIGURE 77 PROFIL GÉOLOGIQUE SYNTHÉTIQUE DU LUTÉTIEN SUPÉRIEUR DU CENTRE DU BASSIN PARISIEN (TOULEMONT, 1986)	90
FIGURE 78 RELATION ENTRE LES ÉPAISSEURS DE COUCHES DE GYPSE ET LES ÉPAISSEURS DES MARNES ET CAILLASSES (DUMONT, 2021)	91
FIGURE 79. LOCALISATION DE LA DISSOLUTION DANS LE GYPSE DES MARNES ET CAILLASSES (TOULEMONT, 1974)	92
FIGURE 80 LOG STRATIGRAPHIQUE DES GYPSES DU LUTÉTIEN SUPÉRIEUR (TOULEMONT, 1986)	92
FIGURE 81 A : ÉCHANTILLON DE GYPSE ALBASTROÏDE DU SONDAGE PSM-AVP-SC4244. B : ÉPROUVETTE D OBTENUE PAR RE CAROTTAGE	93
FIGURE 82 A ÉCHANTILLON DE GYPSE FER DE LANCE DU SONDAGE RSB-AVP-SC04200. B ÉPROUVETTE D OBTENUE PAR RE CAROTTAGE	93
FIGURE 83 : EXEMPLE DE LOGS GÉOLOGIQUES DES MASSES ET MARNES DU GYPSE EN ILE-DE-FRANCE (DU MOUZA, 1975)	95
FIGURE 84 :EXTENSION DES MASSES DE GYPSE DU PRIABONIEN SOURCE : DAUPLEY ET AL., (2015)	96
FIGURE 85 ÉPROUVETTE DE GYPSE SACCHAROÏDE PUR « GSII »	97
FIGURE 86 FRONT DE TAILLE DONT SONT ISSUS LES BLOCS DU PRIABONIEN	97
FIGURE 87 ÉPROUVETTE DE GYPSE MATRICIEL	98
FIGURE 88 PHOTOGRAPHIE DES CONDUITS KARSTIQUE OBSERVÉS DANS LA CARRIÈRE.	98
FIGURE 89 PRINCIPE DE LA DIFFRACTOMÉTRIE PAR RAYON X ET PHOTO DU DIFFRACTOMÈTRE D8 DE DRÛCKER.	99
FIGURE 90 MICROSCOPE OPTIQUE NIKON UTILISÉ	100
FIGURE 91 : ÉCHELLE DE CARACTÉRISATION DES RÉSEAUX POREUX SELON LA MÉTHODE CONSIDÉRÉE. (JUNIQUE, 2021)	101
FIGURE 92 : SCHÉMA DES DIFFÉRENTS TYPES DE POROSITÉ	102
FIGURE 93 : DÉTERMINATION DE LA POROSITÉ 48H. ROUSSET-TOURNIER, 2001	103
FIGURE94 MÉCANISME DE PIÉGEAGE DE L'AIR PAR IMBIBITION CAPILLAIRE, A) PAR RUGOSITÉ, B) PAR DÉRIVATION PAR (BOUSQUIE, 1979), D'APRÈS(ROUSSET-TOURNIER, 2001)	104
FIGURE 95 EXEMPLE DE DÉTERMINATION DE LA POROSITÉ PORAL ET FISSURALE POUR DIFFÉRENTS CALCAIRE. D'APRÈS (BOUSQUIE, 1979)	104
FIGURE 96 SCHÉMA D'UN PÉNÉTROMÈTRE UTILISÉ EN POROSIMÉTRIE PAR INTRUSION DE MERCURE. (HAFFEN, 2012)	105
FIGURE 97 SCHÉMA DU RAYON D'ACCÈS AU PORE. (TURMEL, 2014) D'APRÈS (BOUSQUIE, 1979)	106

FIGURE 98 EXEMPLE DE COURBE D'ESSAI DE POROSIMÉTRIE AU MERCURE. A : DISTRIBUTION DES DIAMÈTRES DE PORE. B : COURBE D'INTRUSION CUMULÉE DE MERCURE. (TOMACHOT, 2002)	108
FIGURE 99 : MONTAGE DES ESSAIS D'IMBIBITION. TOMACHOT, 2002	109
FIGURE 100 : EXEMPLE DE COURBE DE SUIVI D'IMBIBITION. AFNOR, (1999)	109
FIGURE 101 REPRÉSENTATION SCHÉMATIQUE DE LA TENSION INTERFACIALE À L'INTERFACE LIQUIDE-GAZ. (ROUSSET-TOURNIER, 2001)	109
FIGURE 102 ALLURE DES COURBES D'IMBIBITION CAPILLAIRES SELON LE TYPE DE STRUCTURE POREUSE. 1 : RÉSEAU UNIMODAL, 2 : RÉSEAU BIMODAL, 3 : RÉSEAU HÉTÉROGÈNE. MODIFIÉ D'APRÈS (MERTZ, 1991)	111
FIGURE 103 ILLUSTRATION DU MONTAGE D'UN ESSAI DE PERMÉABILITÉ. A : EMBASE DE PÉNÉTRATION DE L'EAU, B : MISE EN PLACE DE L'ÉPROUVETTE AVEC DES JOINTS TORIQUES, C : INSTALLATION ACHÉVÉE DE L'ÉPROUVETTE ET DE LA TÊTE DE SORTIE D'EAU. D : REMPLISSAGE DE LA CELLULE TRIAXIALE POUR L'IMPOSITION D'UNE PRESSION LATÉRAL.	113
FIGURE 104 EXEMPLE DE COURBE CONTRAINTE DÉFORMATION. (TOMACHOT, 2002)	115
FIGURE 105 : SCHÉMA DE PRINCIPE DE LA MESURE DE LA VITESSE DU SON.	115
FIGURE 106 A : EXEMPLE DE SIGNAL OBTENU PAR EXCITATION. B : SPECTRE DE FRÉQUENCE OBTENU APRÈS TRAITEMENT	116
FIGURE 107 PRINCIPE DE L'ESSAI DE FRÉQUENCE DE RÉSONNANCE EN MODE LONGITUDINAL	117
FIGURE 108 COMPARAISON DES MODULES D'ÉLASTICITÉ OBTENUS PAR VITESSE DU SON (VP) ET FRÉQUENCE DE RÉSONNANCE (F)	118
FIGURE 109 SCHÉMA DU MONTAGE EXPÉRIMENTAL DE DISSOLUTION SUR POUVRE	119
FIGURE 110 REPRÉSENTATION DES RÉSULTATS EN LOG-LOG POUR LA DÉTERMINATION DE L'ORDRE CHIMIQUE DE RÉACTION. (ZAIER, 2021)	120
FIGURE 111 CLASSIFICATION DES ISOTHERMES D'ADSORPTION (ROUSSET-TOURNIER, 2001. D'APRÈS BRUNAUER ET AL., 1940)	121
FIGURE 112 ISOTHERME D'ADSORPTION / DÉSORPTION ET REPRÉSENTANT DES PROCESSUS INDUIT. (ROUSSET-TOURNIER, 2001)	122
FIGURE 113 A : SCHÉMA DU MONTAGE D'UNE ÉPROUVETTE LORS D'UN ESSAI DE PERCOLATION. B : PHOTOGRAPHIE DU BANC D'ESSAI	123
FIGURE 114 SCHÉMA DU MONTAGE EXPÉRIMENTAL DE PERCOLATION	124
FIGURE 115 REPRÉSENTATION DU DISPOSITIF DE DISQUE TOURNANT (OUABEL, 2022)	125
FIGURE 116 SCHÉMA REPRÉSENTANTS LES DIFFÉRENTS PARAMÈTRES DE LA RUGOSITÉ. SOURCE (KEYENCE)	126
FIGURE 117 SCHÉMA DU PRINCIPE DE L'ESSAI DE DISSOLUTION SUR PLAQUE.	127
FIGURE 118 DIAGRAMME SYNTHÉTIQUE DES ESSAIS RÉALISÉS	128
FIGURE 119 RÉSULTATS DE L'IDENTIFICATION ET DE LA SEMI-QUANTIFICATION DES PHASES MINÉRALOGIQUES CRISTALLISÉES PAR DIFFRACTION DES RAYONS X.	133
FIGURE 120 OBSERVATION AU MICROSCOPE OPTIQUE DE LAME MINCE PÉTROGRAPHIQUE DU GYPSE MATRICIEL ; A : VUE GÉNÉRALE À X20. B : ZONE DE MACROCRISTAUX X30 LPNA C : DIFFÉRENCE DE DENSITÉ X20. D : POROSITÉ DANS LA MATRICE X1 00 LPNA. E : ALTÉRATION X100. F VUE DE LA CALCITE LPA X100.	136
FIGURE 121 OBSERVATION AU MICROSCOPE OPTIQUE DE LAME MINCE PÉTROGRAPHIQUE DU GYPSE SACCHAROÏDE PUR. A : VUE GÉNÉRALE DE LA LAME (X20, LPNA). B : VUE GÉNÉRALE AVEC MISE EN ÉVIDENCE DE BIOCLASTES (X50, LPA). C: MICRO-GRAINS DE CALCITE DANS LES ZONES ALTÉRÉES DU GYPSE (X200, LPA). D : ALTÉRATIONS LE LONG DES CLIVAGES DU GYPSE (X 200, LPNA). E : PHASE DE LIAISON (X400, LPNA). F : VISUALISATION DE LA POROSITÉ EN BLEU (X100, LPNA).	138
FIGURE 122 OBSERVATION AU MICROSCOPE OPTIQUE DE LAME MINCE PÉTROGRAPHIQUE DU GYPSE SACCHAROÏDE À INTERLITS. A : VUE GÉNÉRALE (X 50, LPNA). B : ZONES HÉTÉROGÈNES (X 50, LPA), C : RÉPARTITION DE LA POROSITÉ (X100, LPNA), D : ZONE AVEC DES HÉTÉROGÉNÉITÉS DE TYPE MICA ET OXYDES (X 100, LPNA). E : PRÉSENCE ISOLÉE D'UN ZIRCON (X100, LPA), F : TOURMALINE (X200, LPA)	139
FIGURE 123 OBSERVATION AU MICROSCOPE OPTIQUE DE LAME MINCE PÉTROGRAPHIQUE RÉALISÉE SUR UN ÉCHANTILLON DE GYPSE FER DE LANCE (A À D) A : VUE GÉNÉRALE (X50, LPNA). B : ALTÉRATIONS DU GYPSE (X100, LPNA). C : GRAINS DE GYPSE ENTRE LES CRISTAUX FER DE LANCE (X50, LPNA). D : AMAS DE GYPSE ENTRE LES MACROCRISTAUX FER DE LANCE ET GRAINS DE CALCITE DANS UN CRISTAL FER DE LANCE (X100, LPA).	140
FIGURE 124 OBSERVATION AU MICROSCOPE OPTIQUE DE LAME MINCE PÉTROGRAPHIQUE RÉALISÉE SUR UN ÉCHANTILLON DE GYPSE ALBASTROÏDE. A : VUE GÉNÉRALE DU GYPSE ALBASTROÏDE (X 20). B : POROSITÉ FISSURALE DU GYPSE ALBASTROÏDE (X20), C : ZONE CONTENANT DES MINÉRAUX POLARISANT DANS LES TEINTES DU 3 <sup>ÈME</sup> ORDRE PRIS DANS LE GYPSE ALBASTROÏDE (X50, LPA). D : MINÉRAL INCLUS DANS LA MASSE DE GYPSE (X100 LPA)	141

FIGURE 125 OBSERVATION AU MICROSCOPE OPTIQUE D'UNE LAME MINCE PÉTROGRAPHIQUE RÉALISÉE SUR DU GYPSE OROGÉNIQUE. A : VISUALISATION DE 2 TEXTURES DIFFÉRENTES (X50, LPNA). B : BANDE CLAIRE COMPOSANT LA MAJORITÉ DE LA LAME MINCE EN LPA ET MISE EN ÉVIDENCE DE LA CALCITE (X40), C ET D : MISE EN ÉVIDENCE DES BANDES SUBAUTOMORPHES DE GYPSE EN LPNA ET LPA AVEC IDENTIFICATION DE MICROCLINE (X50), E : VISUALISATION DE LA POROSITÉ (X 100, LPNA). F : VISUALISATION DES MINÉRAUX ACCESSOIRES COMME LA MAGNÉSITE DANS LES INTERLITS (X100).	143
FIGURE 126 QUANTIFICATION DE LA POROSITÉ TOTALE ET DE SA DISTINCTION ENTRE POROSITÉ ACCESSIBLE ET PIÉGÉE.	145
FIGURE 127 (A) COURBE DE DISTRIBUTION DES RAYONS D'ACCÈS AUX PORES. (B) COURBE CUMULÉE D'INTRUSION DE MERCURE.	146
FIGURE 128 DISTRIBUTION DES RAYONS DE PORE POUR UN GYPSE DE FACIÈS ALBASTROÏDE. (BUSTAMANTE ET AL., 2020)	148
FIGURE 129 COURBES D'IMBIBITION CAPILLAIRE DES DIFFÉRENTS FACIÈS DE GYPSE ÉTUDIÉS. PLUSIEURS ESSAIS NOTÉS 1 ET 2 MONTRENT LA VARIABILITÉ DES RÉPONSES DES GYPSES ET ONT PERMIS LE CALCUL D'UN ÉCART TYPE	149
FIGURE 130 REPRÉSENTATION DU COEFFICIENT D'IMBIBITION CAPILLAIRE (C1) EN FONCTION DE LA POROSITÉ TOTALE POUR DIFFÉRENTES ROCHES SÉDIMENTAIRES. MODIFIÉ D'APRÈS (BOUSQUIE, 1979).	150
FIGURE 131 EXEMPLE DU CHANGEMENT DE COLORATION AVEC LA SATURATION D'UNE ÉPROUVETTE DE GYPSE OROGÉNIQUE.	150
FIGURE 132 MODULE D'ÉLASTICITÉ DYNAMIQUE CALCULÉ POUR LES FACIÈS DE GYPSE ÉTUDIÉS	154
FIGURE 133 COMPARAISON DES MODULES ÉLASTIQUES OBTENUS PAR LA MESURE DE LA VITESSE DU SON (VP) ET DE LA FRÉQUENCE DE RÉSONANCE (F).	155
FIGURE 134 RELATION ENTRE LA POROSITÉ TOTALE (NT) ET LE MODULE ÉLASTIQUE	156
FIGURE 135 ESTIMATION DE LA POROSITÉ PORALE (NPORE) ET FISSURALE (NFISS) À PARTIR DE LA POROSITÉ ET DE L'INDICE DE CONTINUITÉ	156
FIGURE 136 PROPOSITION DE CLASSIFICATION DES FACIÈS DU GYPSE À PARTIR DE PROPRIÉTÉS GRANULOMÉTRIQUES ET TEXTURALES	159
FIGURE 137 A : ILLUSTRATION DU MONTAGE EXPÉRIMENTALE DE PERCOLATION. B : SCHÉMA DE DÉCOUPE DES ÉCHANTILLONS POUR LE SUIVI POST PERCOLATION	160
FIGURE 138 SUIVI DE PERCOLATION DU GYPSE MATRICIEL PUR. ÉVOLUTION DU TAUX DE DÉGRADATION DU GYPSE PAR DISSOLUTION APRÈS A : 1 SEMAINE (VIOLET) ET 2 SEMAINES (BLEU) DE PERCOLATION. B: 1 MOIS (ROUGE) ET 2 MOIS (VERT) DE PERCOLATION.	162
FIGURE 139 SUIVI DE PERCOLATION DU GYPSE SACCHAROÏDE PUR. A : ÉVOLUTION DU TAUX DE DÉGRADATION DU GYPSE À 1 SEMAINE (VIOLET) ET 2 SEMAINES (BLEU).. B : ÉVOLUTION DU TAUX DE DÉGRADATION DU GYPSE À 1 MOIS (ROUGE) ET 2 MOIS (VERT).	163
FIGURE 140 PHOTOGRAPHIE DE CHEMINS PRÉFÉRENTIELS DÉVELOPPÉES DANS DES GYPSES SACCHAROÏDES APRÈS ALTÉRATIONS PAR PERCOLATION PENDANT 2 MOIS. À GAUCHE LE FACIÈS PUR, À DROITE LE FACIÈS À INTERLITS	164
FIGURE 141 SUIVI DE PERCOLATION DU GYPSE SACCHAROÏDE À INTERLITS ; A : ÉVOLUTION DU TAUX DE DÉGRADATION À 1 SEMAINE (VIOLET) ET 2 SEMAINES (BLEU).. B : ÉVOLUTION DU TAUX DÉGRADATION À 1 MOIS (ROUGE) ET 2 MOIS (VERT).	165
FIGURE 142 : ESTIMATION DU TAUX DE PERTE DE MASSE PAR JOURS DE PERCOLATION EN FONCTION DE LA DURÉE D'ESSAI.	166
FIGURE 143 ÉVOLUTION DE LA COMPOSITION DU GYPSE APRÈS PERCOLATION. A : 1 SEMAINE, B : 2SEMAINES, C : 1 MOIS, D : 2 MOIS	168
FIGURE 144 ÉVOLUTION DE LA POROSITÉ À L'EAU DANS LE GYPSE MATRICIEL	170
FIGURE 145 ÉVOLUTION DE LA POROSITÉ PORALE (NPORE) ET FISSURALE (NFISS) AVEC LA PERCOLATION	171
FIGURE 146 ÉVOLUTION DU COEFFICIENT D'IMBIBITION CAPILLAIRE AVEC LA PERCOLATION	172
FIGURE 147 ÉVOLUTION DES DIAMÈTRES MOYENS PAR POROSIMÉTRIE D'INTRUSION DE MERCURE DES FACIÈS DE GYPSE ALTÉRÉS PAR PERCOLATION. A :1 SEMAINE : 2 SEMAINES. C : 1 MOIS. D : 2 MOIS	173
FIGURE 148 ÉVOLUTION DES COURBES DE MERCURE CUMULÉES PAR POROSIMÉTRIE D'INTRUSION DE MERCURE DES FACIÈS DE GYPSE ALTÉRÉS PAR PERCOLATION. A :1 SEMAINE : 2 SEMAINES. C : 1 MOIS. D : 2 MOIS	175
FIGURE 149 ÉVOLUTION DE LA PERMÉABILITÉ DES GYPSES MATRICIELS (GM) ET SACCHAROÏDE PUR (B2GS) POUR DIFFÉRENTE DURÉE DE PERCOLATION.	176
FIGURE 150 PHOTO MICROSCOPIQUE PHOTOS PRISES AU MICROSCOPE OPTIQUE POLARISANT DU GYPSE MATRICIEL POST PERCOLATION. A : VUE GÉNÉRALE DE LA LAME POST PERCOLATION À X50. B : VUE GÉNÉRALE INITIALE À 50. C : VISUALISATION DE LA POROSITÉ À X100.D : DISSOLUTION RÉGRESSION À X100 FORMANT UNE BANDE DE POROSITÉ. E : DISSOLUTION RÉGRESSION À X100 FORMANT UNE BANDE	

DE POROSITÉ PARTIELLEMENT COMBLÉE PAR DES ARGILES. F : OBSERVATION DE LA CALCITE EN LPA À X100. G ET H : VISUALISATION DE L'ALTÉRATION D'UN GRAIN ET DE L'EFFET DE LA DISSOLUTION EN LPNA ET LPA À X100	178
FIGURE 151 ÉVOLUTION DE LA POROSITÉ À L'EAU DANS LE SACCHAROÏDE PUR AVEC LA PERCOLATION	179
FIGURE 152 ÉVOLUTION DE LA PERMÉABILITÉ DES GYPSES MATRICIELS (GM) ET SACCHAROÏDE PUR (B2GS) POUR DIFFÉRENTE DURÉE DE PERCOLATION.	181
FIGURE 153 PHOTO MICROSCOPIQUE DU GYPSE SACCHAROÏDE PUR POST PERCOLATION. A : VUE GÉNÉRALE DE LA LAME MINCE POST PERCOLATION À X50. B : BORDURE SAINTE DES GRAINS INITIALEMENT À X200. C BORD DES GRAINS ALTÉRÉS À X200. D : VISUALISATION DES ARGILES ISSUES DE LA DÉGRADATION DU MATÉRIAU À X200. E : VISUALISATION DE LA CALCITE À X100. F : VISUALISATION DES ÉLÉMENTS MICROMÉTRIQUES PRODUITS PAR LA DÉGRADATION DU GYPSE X 200. G : VISUALISATION DE LA POROSITÉ X100. G : VUE GÉNÉRALE DE LA LAME ET DU CHEMIN PRÉFÉRENTIEL X20.	183
FIGURE 154 ÉVOLUTION DE LA POROSITÉ DU GYPSE SACCHAROÏDE À INTERLITS	184
FIGURE 155 PHOTO MICROSCOPIQUE DU GYPSE SACCHAROÏDE PUR POST PERCOLATION. A : VISUALISATION DE LA LAME ET DES DIGITATIONS À X20. B VUE GÉNÉRALE DE LA LAME POST PERCOLATION À X50. C VISUALISATION DES PLANS DE CLIVAGE DU GYPSE ALTÉRÉ À X200. D : MICRO GRAINS DE CALCITE DANS LES ZONES ARGILEUSES À X100. E : OBSERVATION DE L'ALTÉRATION ET DE LA PRÉSENCE DE CALCITE DANS DES GRAINS DE GYPSE EN LPA X100. G : OBSERVATION DE LA POROSITÉ INTERGRANULAIRE DANS LES ZONES GYPSEUSES. G : VISUALISATION EN LPNA ET LPA D'UN GRAIN DE CÉLESTINE X200. H : OBSERVATION DE LA POROSITÉ DANS LES ZONES ARGILEUSES X100	187
FIGURE 156 ÉVOLUTION DES CONTRAINTES DE RUPTURES ET DU MODULE D'ÉLASTICITÉ STATIQUE AVEC LA PERCOLATION.	189
FIGURE 157 ÉVOLUTION DU MODULE D'ÉLASTICITÉ PAR LA MÉTHODE DE LA VITESSE DU SON ET DE LA FRÉQUENCE DE RÉSONNANCE.	190
FIGURE 158 RÉDUCTION DU MODULE ÉLASTIQUE AVEC L'AUGMENTATION DE LA POROSITÉ	193
FIGURE 159 RELATION ENTRE CONDUCTIVITÉ ÉLECTRIQUE EN SOLUTION ET CONCENTRATION EN GYPSE DISSOUS À (A) 25°C (B) 30°C ET (C) 35°C	197
FIGURE 160 EFFET SUR LE FLUX DE DISSOLUTION D'UN RÉGIME DE DISSOLUTION SIMPLE OU DOUBLE. GUO ET AL., (2016)	202
FIGURE 161 DIAGRAMME D'ARRHENIUS À PARTIR DES POINTS DE MESURES DE DISSOLUTION EN BATCH AVEC UNE VITESSE D'AGITATION DE 300 TPM POUR 25, 30 ET 35°C.	204
FIGURE 162 EFFET DE LA VITESSE DE ROTATION SUR LE TAUX DE DISSOLUTION DES FACIÈS DE GYPSE.	205
FIGURE 163 EFFET DE LA GRANULOMÉTRIE DES GRAINS DE GYPSE SUR LE TAUX DE DISSOLUTION MOYEN À 30°C. BARRE PLEINE : GRAINS INFÉRIEURS À 0,2 MM, BARRE HACHURÉE : GRAINS ENTRE 0,2 ET 0,5 MM.	207
FIGURE 164 ILLUSTRATION DES MONTAGES EXPÉRIMENTAUX POUR LE SUIVI DES SURFACES D'ÉCHANTILLONS MASSIFS DE GYPSE SOUMIS À LA DISSOLUTION. A : MONTAGE DE L'ESSAI DE DISSOLUTION SUR DISQUE TOURNANT. B : MONTAGE DE L'ESSAI DE DISSOLUTION SUR PAVÉ.	209
FIGURE 165 ESSAI DE DISSOLUTION SUR DISQUE EN ROTATION : TAUX DE DISSOLUTION MOYEN EN FONCTION DE LA VITESSE DE ROTATION DE LA PALE CONVERTIE EN VITESSE LINÉAIRE PAR L'ÉQUATION 3.C.2	210
FIGURE 166 EFFET DE LA DISSOLUTION SUR DES DISQUES DE GYPSE MATRICIEL. A : DISQUE APRÈS 24 HEURES À 50 TPM. B : DISQUE APRÈS 24 HEURES À 150 TPM. C : ZONE DE DISSOLUTION PRÉFÉRENTIELLE. D ET E : DISSOLUTION DES GRAINS DE GYPSE MILLIMÉTRIQUE. F : RÉSIDU DE GYPSE PARTIELLEMENT DISSOUS.	211
FIGURE 167 EFFET DE LA DISSOLUTION SUR DES DISQUES DE GYPSE SACCHAROÏDE PUR. A : DISQUE APRÈS 24 HEURES À 50 TPM. B : EFFET DE BORD LORS DE LA DISSOLUTION À 50 TPM. C : DISQUE APRÈS 24 HEURES À 150 TPM. D : DISSOLUTION DES GRAINS DE GYPSE. E : DÉVELOPPEMENT D'UNE POROSITÉ LOCALE AVEC LA DISSOLUTION. F : DISSOLUTION D'UN GRAIN MICROMÉTRIQUE ET MISE EN ÉVIDENCE DES PLANS DE CLIVAGES	212
FIGURE 168 EFFET DE LA DISSOLUTION PAR ROTATION SUR DES DISQUES DE GYPSE SACCHAROÏDE À INTERLITS. A : DISQUE APRÈS 24 HEURES À 50 TPM. B : MISE EN ÉVIDENCE LA DISSOLUTION PRÉFÉRENTIELLE DU DISQUE C : VUE EN RELIEF DE LA ZONE DISSOUTE DE MANIÈRE PRÉFÉRENTIELLE. D : MISE EN RELIEF DES MINÉRAUX INSOLUBLES. E : VISUALISATION DE LA DISSOLUTION DES CRISTAUX DE GYPSES PRÉFÉRENTIELLEMENT À LA PHASE DE LIAISON. F : VISUALISATION EN FAUSSE COULEURS DE LA DISSOLUTION DES CRISTAUX DE GYPSES PRÉFÉRENTIELLEMENT À LA PHASE DE LIAISON.	213
FIGURE 169 OBSERVATION D'UN PAVÉ DE GYPSE MATRICIEL AVANT ET APRÈS ESSAI DE DISSOLUTION SUR PLAQUE. A : VUE D'UN CRISTAL DE GYPSE MILLIMÉTRIQUE AVANT ESSAI. B : VISUALISATION DE L'EFFET DE L'ÉCOULEMENT SUR LE PAVÉ (X20). C : DISSOLUTION PRÉFÉRENTIELLE DES CRISTAUX MILLIMÉTRIQUES (X50). D : CRISTAL DE GYPSE PARTIELLEMENT DISSOUS (X100).	215
FIGURE 170 ÉVOLUTION DES PARAMÈTRES DÉFINISSANT LA RUGOSITÉ POUR UN PAVÉ DE GYPSE MATRICIEL	215

FIGURE 171 ÉVOLUTION DE LA SURFACE D'UN PAVÉ DE GYPSE SACCHAROÏDE À INTERLITS. EN FAUSSES COULEURS : LA FORMATION D'UN SILLON DE DISSOLUTION.	216
FIGURE 172 ÉVOLUTION DES PARAMÈTRES DÉFINISSANT LA RUGOSITÉ POUR UN PAVÉ DE GYPSE SACCHAROÏDE À INTERLITS	217
FIGURE 173 OBSERVATION AU MICROSCOPE NUMÉRIQUE D'UN PAVÉ DE GYPSE SACCHAROÏDE APRÈS DES CYCLES DE DISSOLUTIONS. A : DISSOLUTION DIFFÉRENTIEL À PARTIR DES MACLES DU GYPSE. B : ÉVOLUTION DE LA PHASE DE LIAISON.	217
FIGURE 174 ÉVOLUTION DES PARAMÈTRES DÉFINISSANT LA RUGOSITÉ POUR UN PAVÉ DE GYPSE SACCHAROÏDE PUR PAR LE MICROSCOPE KEYENCE	218
FIGURE 175 SCHÉMA DU PROCESS DE CALCUL DANS DISROC. SOURCE (FRACSIMA, 2016)	227
FIGURE 176 SCHÉMA GÉNÉRAL DU PROBLÈME CHIMIQUE INITIAL DANS DISROC. SOURCE (FRACSIMA, 2016)	228
FIGURE 177 : ÉVOLUTION DE LA CONCENTRATION AVEC LA DISSOLUTION DU GYPSE AU COURS DU TEMPS. CAS D'UN GYPSE MATRICIEL	230
FIGURE 178 SCHÉMA DU MODÈLE D'ÉPROUVETTE DES CONDITIONS INITIALES.	235
FIGURE 179 ÉVOLUTION DE LA POROSITÉ AVEC LA DISSOLUTION PAR LIGNE DE MAILLE	236
FIGURE 180 ÉVOLUTION DE LA POROSITÉ DANS LA SIMULATION D'UNE ÉPROUVETTE DE GYPSE SACCHAROÏDE PUR AVEC UNE DISTRIBUTION HOMOGENÈ DE LA POROSITÉ SUR LE PREMIER CENTIMÈTRE MODÉLISÉ.	237
FIGURE 181 ÉVOLUTION APRÈS 60 JOURS DE MODÉLISATION	237
FIGURE 182 ÉVOLUTION DU DIAMÈTRE DE PORE DANS LA SIMULATION D'UNE ÉPROUVETTE DE GYPSE SACCHAROÏDE PUR AVEC UNE DISTRIBUTION HOMOGENÈ DE LA POROSITÉ	238
FIGURE 183 ÉVOLUTION DE LA DISSOLUTION EN FONCTION DE LA POROSITÉ INITIALE.	239
FIGURE 184 ÉVOLUTION DE LA DISSOLUTION EN FONCTION DU DIAMÈTRE DE PORE.	239
FIGURE 185 ÉVOLUTION DE LA PROPAGATION DU FRONT DE DISSOLUTION EN FONCTION DE LA PERMÉABILITÉ INITIALE. A : PERMÉABILITÉ. B : POROSITÉ	240
FIGURE 186 DISTRIBUTION HÉTÉROGENÈ DE LA POROSITÉ DANS UNE ÉPROUVETTE NUMÉRIQUE DE GYPSE AVANT (A) ET APRÈS (B) SIMULATION DE PERCOLATION D'EAU PURE PENDANT 2 MOIS.	241
FIGURE 187 ÉVOLUTION DE LA POROSITÉ DANS LA SIMULATION D'UNE ÉPROUVETTE DE GYPSE SACCHAROÏDE PUR AVEC UNE DISTRIBUTION HÉTÉROGENÈ DE LA POROSITÉ	241
FIGURE 188 MAILLAGE MISE EN PLACE ET CONDITIONS AUX LIMITES FIXANT LE DÉPLACEMENT $UX = 0$ (EN ROUGE)	242
FIGURE 189 : SCHÉMA DU MASSIF AVEC LA PERTURBATION CHIMIQUE ET LA CONTRAINTE DU BÂTIMENT. LES AXES ROUGES REPRÉSENTENT LES POSITIONS DES COUPES PRÉSENTÉES CI-DESSOUS. LES POINTS VERTS, LES POINTS DE SUIVI DU DÉPLACEMENT.	243
FIGURE 190 PROGRESSION DE LA PERTURBATION CHIMIQUE DANS LE CALCAIRE SUR 300 000 JOURS.	244
FIGURE 191 ÉVOLUTION DE LA CONCENTRATION (A) ET DE LA POROSITÉ (B) À L'INTERFACE GYPSE – CALCAIRE À 2 M DE PROFONDEUR	245
FIGURE 192 VITESSE D'ÉCOULEMENT DU FLUIDE APRÈS 500 000 JOURS DE DISMULATION	245
FIGURE 193 ÉVOLUTION DE LA POROSITÉ À L'INTERFACE CALCAIRE-GYPSE PAR DISSOLUTION DU GYPSE DE 0 À 300 000 JOURS	246
FIGURE 194 EVOLUTION DE LA VITESSE D'ÉCOULEMENT AVEC L'AVANCEMENT DE LA SIMULATION.	247
FIGURE 195 ÉVOLUTION DE LA CONCENTRATION (A) ET DE LA POROSITÉ (B) À L'INTERFACE GYPSE – CALCAIRE À 16 M DE PROFONDEUR	248
FIGURE 196 ÉVOLUTION DE LA CONCENTRATION EN CALCIUM AVEC L'AVANCEMENT DE LA DISSOLUTION	249
FIGURE 197 EVOLUTION DE LA PERMÉABILITÉ ET DU DIAMÈTRE DE PORE AVEC LA DISSOLUTION	249
FIGURE 198 DIMINUTION DE LA RÉSISTANCE MÉCANIQUE (VIA LA COHÉSION) AVEC LA DISSOLUTION	250
FIGURE 199 DÉPLACEMENT DE LA COUCHE BÂTI AVEC LA DISSOLUTION DE LA COUCHE DE GYPSE. A : ÉVOLUTION VERTICALE. (UY) B : ÉVOLUTION HORIZONTALE (UX).	251
FIGURE 200 ÉVOLUTION DE LA POROSITÉ APRÈS UNE PÉRIODE DE SIMULATION DE $10 \cdot 10^6$ JOURS.	252
FIGURE 201 ÉVOLUTION DE LA POROSITÉ ET DE LA CONCENTRATION À 11 M DE PROFONDEUR SUR 10 MILLIONS DE JOURS.	252
FIGURE 202 VISUALISATION DE LA DÉFORMÉ DES DÉPLACEMENTS EN FIN DE SIMULATION	252
FIGURE 203 DÉPLACEMENT DE LA COUCHE BÂTI AVEC LA DISSOLUTION DE LA COUCHE DE GYPSE. A : ÉVOLUTION VERTICALE. (UY) B : ÉVOLUTION HORIZONTALE (UX).	253
FIGURE 203 DÉPLACEMENT VERTICALE SUR 10 000 000 DE JOURS	254
FIGURE 204 PROPOSITION DE CLASSIFICATION DES DIFFÉRENTS FACIÈS DU GYPSE ET DE LEUR SENSIBILITÉ À L'APPARITION DE CHEMINS PRÉFÉRENTIELS.	260
FIGURE 205 : A : CARTE GÉOLOGIQUE. B : COUPE GÉOLOGIQUE SIMPLIFIÉE DU BASSIN PARISIEN. SOURCE (LINOIR, 2014)	295

FIGURE 206 : LIMITE D'EXTENSION DES CYCLES DE TRANSGRESSIONS/RÉGRESSIONS AU PALÉOCÈNE. SOURCE MODIFIÉ D'APRÈS (DELFAU, 1974)	297
FIGURE 207 COUPE SCHÉMATIQUE DE L'EXPLOITATION DES CARRIÈRES DE GYPSE. SOURCE : (DU MOUZA, 1975)	300
FIGURE 208 A : MISE EN PLACE DES BOISAGES. B : BOISEMENTS DANS UNE CARRIÈRE DE GYPSE. SOURCE (VACHAT, 1982)	300
FIGURE 209 HISTOGRAMME DES COEFFICIENTS DE RECOUVREMENT LORS DES REMONTÉES DE FONTIS DANS LE GYPSE. SOURCE (VACHAT, 1982)	301
FIGURE 210 SCHÉMA DE L'ORGANISATION D'UN SYSTÈME KARSTIQUE. SOURCE GILLI, (2011)	302
FIGURE 211 EFFET DE LA VITESSE ET ÉVOLUTION D'UNE FISSURE DANS LE GYPSE. D'APRÈS (JAMES AND LUPTON, 1978)	304
FIGURE 212 SCHÉMA DE FORMATION D'UN PARAKARST DANS UN MILIEU GYPSEUX EN CONDITION ARTÉSIENNE. (A) LE LONG DE FISSURE, (B) LE LONG D'UNE FAILLE IMPORTANTE, (C) PAR DISSOLUTION DE CONTACT. SOURCE (KLIMCHOUK, 1996C)	305
TABLEAU 1 EXEMPLE DE LA SOLUBILITÉ DE QUELQUES MINÉRAUX.	25
TABLEAU 2 VARIABILITÉ DE LA SOLUBILITÉ DU GYPSE À 25°C DANS LA LITTÉRATURE.	26
TABLEAU 3 : VARIATION DE LA SATURATION DU GYPSE EN FONCTION DE LA TEMPÉRATURE (G/L).D'APRÈS HONG ET AL., 2018	28
TABLEAU 4 : SOLUBILITÉ DU GYPSE EN FONCTION DU PH DANS DE L'EAU PURE. (SHUKLA ET AL., 2008)	30
TABLEAU 5 : VALEURS DU COEFFICIENT DE TRANSPORT POUR DIFFÉRENTES VITESSES DE ROTATION.	37
TABLEAU 6 VALEURS DES PARAMÈTRES DU MODÈLE DE MPOHR-COULOMB DANS LA LITTÉRATURE POUR LE GYPSE	45
TABLEAU 7 ÉVOLUTION DE LA RÉSISTANCE À LA COMPRESSION DU GYPSE EN IMMERSION. D'APRÈS (ZHU ET AL., 2019)	48
TABLEAU 8 : TAUX DE CONTRAINTE APPLIQUÉE ET VALEURS CORRESPONDANTES DE MASSIEU (1996)	49
TABLEAU 9 PROPRIÉTÉS POROMÉCANIQUES DU GYPSE. * TIRÉES DE AUVRAY (2003). BP : BASSIN PARISIEN	52
TABLEAU 10 MODULE D'ÉLASTICITÉ ET COEFFICIENT DE POISSON DANS LA LITTÉRATURE.	54
TABLEAU 11. PROPRIÉTÉS MÉCANIQUES DU GYPSE EN FONCTION DE SA GRANULOMÉTRIE. (MOIRIAT, 2001). RC : RÉSISTANCE EN COMPRESSION, RTB (RÉSISTANCE À L'ESSAI BRÉSILIEN, VP : VITESSE DU SON, N : POROSITÉ, MV : DENSITÉ (KG/M <sup>3</sup> )	56
TABLEAU 12 : PERMÉABILITÉ DU GYPSE DANS LA LITTÉRATURE	56
TABLEAU 13 CARACTÉRISATION DES GYPSES DANS DIFFÉRENTES ZONES EXPLOITÉES DE DEUX CARRIÈRES. (AUVRAY, 2003)	58
TABLEAU 14 CONDUCTIVITÉ HYDRAULIQUE D'UN CONDUIT EN FONCTION DE SA GÉOMÉTRIE SELON KOZENY-CARMAN. (HA, 2012)	70
TABLEAU 15 PARAMÈTRES HYDRAULIQUES ET DE TRANSPORT UTILISÉS PAR ÁGUILA ET AL., (2022).	73
TABLEAU 16 QUANTIFICATION DES ÉLÉMENTS TRACES DU LUDIEN À PARTIR DE SONDRAGE CAROTTÉ. D'APRÈS (RENARD, 1974)	96
TABLEAU 17 DISTINCTION DES TYPES DE POROSITÉS EN FONCTION DU RAYON POUR DIFFÉRENTS AUTEURS ET DES MÉTHODES UTILISÉES. MODIFIÉ D'APRÈS (JUNIQUE, 2021) MO : MICROSCOPIE OPTIQUE HG : POROSIMÉTRIE MERCURE	101
TABLEAU 18 PRESSIONS APPLIQUÉE À CHAQUE ÉTAPE DE L'ESSAI DE PERMÉABILITÉ	114
TABLEAU 19 SYNTHÈSE DES GÉOMÉTRIES POUR LES MESURES EN FRÉQUENCE DE RÉSONANCE	117
TABLEAU 20 PROGRAMME EXPÉRIMENTAL DE DISSOLUTION SUR POUFRE.	119
TABLEAU 21 VALEURS DE SURFACES SPÉCIFIQUES D'APRÈS LA LITTÉRATURE	123
TABLEAU 22 VARIATION DU DÉBIT DU RÉSERVOIR EN FONCTION DE LA PRESSION APPLIQUÉE	124
TABLEAU 23 TABLEAU SYNTHÉTIQUE DES QUANTITÉS D'ÉCHANTILLONS UTILISÉS	129
TABLEAU 24 PROPORTIONS DES ÉLÉMENTS MAJEURS RAMENÉS EN POURCENTAGE D'OXYDES DANS LES GYPSES ÉTUDIÉS. PF : PERTE AU FEU À 1000°C	134
TABLEAU 25 PROPORTIONS DES ÉLÉMENTS MINEURS DÉTECTÉS PAR MÉTHODE ICP DANS LES GYPSES ÉTUDIÉS.	135
TABLEAU 26 SOLUBILITÉ DES PRINCIPAUX MINÉRAUX IDENTIFIÉS DANS LES FACIÈS DE GYPSE.	135
TABLEAU 27 ESTIMATION DE LA POROSITÉ À PARTIR D LA PÉTROGRAPHIQUE.* MATRICE ET POROSITÉ NON DIFFÉRENCIÉES	137
TABLEAU 28 CARACTÉRISATION DE LA POROSITÉ DES GYPSES ÉTUDIÉS. * % DE LA POROSITÉ MERCURE.	144
TABLEAU 29 DÉTERMINATION DES COEFFICIENTS D'IMBIBITION CAPILLAIRE DES GYPSES ÉTUDIÉS	149
TABLEAU 30 RÉSULTATS DES ESSAIS DE COMPRESSIONS. * E <sub>STAT</sub> : MODULE ÉLASTIQUE STATIQUE	152

TABLEAU 31 DÉTERMINATION DE LA VITESSE DE PROPAGATION DES ONDES P ET DES PARAMÈTRES MÉCANIQUES ASSOCIÉS.	153
TABLEAU 32 TABLEAU RÉCAPITULATIF DE LA CARACTÉRISATION DES GYPSES ÉTUDIÉS. *DIAMÈTRES D'ACCÈS RAYON CORRESPONDANT À LA TAILLE DE PORE MAXIMALE DONNANT ACCÈS À LA PLUS GRANDE PARTIE DU VOLUME POREUX PAR INTRUSION DE MERCURE. ** LE COEFFICIENT DE DISPERSION TRADUIT L'ÉTALEMENT DES VALEURS	158
TABLEAU 33 RÉDUCTION DE LA LONGUEUR DES ÉPROUVETTES AVEC LA PERCOLATION ET ESTIMATION DE LA RÉCESSION SUR 1 AN	166
TABLEAU 34 ÉVOLUTION DU COEFFICIENT DE CAPILLARITÉ (C <sub>1</sub> ) AVEC LA PERCOLATION. VAR* VARIATION DU COEFFICIENT C <sub>1</sub>	172
TABLEAU 35 ÉVOLUTION DES POROSITÉS AU COURS DE LA PERCOLATION. * LA VARIATION CORRESPOND À LA DIFFÉRENCE ENTRE LA VALEUR MOYENNE POST PERCOLATION DES 3 ÉPROUVETTES TESTÉES EN POROSITÉ ET LA VALEUR MOYENNE CE LOT D'ÉPROUVETTE À T = 0). * LA POROSITÉ MERCURE EST DÉTERMINÉE À PARTIR DE LA MOYENNE DE L'ENSEMBLE DES SECTIONS.	174
TABLEAU 36 ÉVOLUTION DE LA POROSITÉ DES ÉPROUVETTES AVEC LA PERCOLATION DES ÉPROUVETTES DE L'ESSAI DE PERMÉABILITÉ	176
TABLEAU 37 VARIATION DE LA POROSITÉ MESURÉE AU MICROSCOPE OPTIQUE ENTRE LA CARACTÉRISATION INITIALE ET APRÈS LA PERCOLATION.	177
TABLEAU 38 ESTIMATION DE LA POROSITÉ DÉVELOPPÉE PAR LE PHÉNOMÈNE DE WHORMHOLE. NB : LA DÉTERMINATION N'A ÉTÉ EFFECTUÉE QUE POUR UNE ÉPROUVETTE DE GYPSE À INTERLITS, D'OÙ L'ABSENCE D'ÉCART TYPE.	179
TABLEAU 39 ÉVOLUTION DU COEFFICIENT DE CAPILLARITÉ (C <sub>1</sub> ) DU GYPSE SACCHAROÏDE PUR AVEC LA PERCOLATION. VAR* VARIATION DU COEFFICIENT C <sub>1</sub>	181
TABLEAU 40 ÉVOLUTION DE LA POROSITÉ DES ÉPROUVETTES DE GYPSE SACCHAROÏDE PUR AVEC LA PERCOLATION	181
TABLEAU 41 ESTIMATION DE LA POROSITÉ DÉVELOPPÉE PAR LE PHÉNOMÈNE DE WHORMHOLE. NB : LA DÉTERMINATION N'A ÉTÉ EFFECTUÉE QUE POUR UNE ÉPROUVETTE DE GYPSE À INTERLITS, D'OÙ L'ABSENCE D'ÉCART TYPE.	184
TABLEAU 42 ÉVOLUTION DU COEFFICIENT DE CAPILLARITÉ (C <sub>1</sub> ) DU GYPSE SACCHAROÏDE À INTERLITS AVEC LA PERCOLATION. VAR* VARIATION DU COEFFICIENT C <sub>1</sub>	186
TABLEAU 43 SYNTHÈSE DE L'ÉVOLUTION DE LA FRÉQUENCE DE RÉSONNANCE ET DU MODULE D'ÉLASTICITÉ ASSOCIÉ MV MASSE VOLUMIQUE, VP VITESSE DU SON.	191
TABLEAU 44 ÉVOLUTION DES PRINCIPAUX PARAMÈTRES PÉTROPHYSIQUES AVEC LA DÉGRADATION DU GYPSE EN PERCOLATION	195
TABLEAU 45 ÉQUATION DE CONVERSION CONDUCTIVITÉ/CONCENTRATION POUR L'ENSEMBLE DES FACIÈS ET TEMPÉRATURE TESTÉS.	198
TABLEAU 46 DÉTERMINATION DE LA SURFACE SPÉCIFIQUE (M <sup>2</sup> /G) PAR LA MÉTHODE BET	199
TABLEAU 47 DÉTERMINATION DES TAUX DE DISSOLUTION ET ORDRE CHIMIQUE DE LA RÉACTION	200
TABLEAU 48 ÉNERGIE D'ACTIVATION DE LA DISSOLUTION DU GYPSE DANS L'EAU. MODIFIÉ D'APRÈS ZAÏER, 2021	203
TABLEAU 49 ÉNERGIES D'ACTIVATION OBTENUES À PARTIR DES COURBES DE DISSOLUTION DU GYPSE À 300 TPM ET 25, 30 ET 35°C.	204
TABLEAU 50 DÉTERMINATION DES ORDRES CHIMIQUES DE RÉACTIONS À 30°C POUR DIFFÉRENTES VITESSES D'AGITATIONS	205
TABLEAU 51 TAUX DE DISSOLUTION DES DIFFÉRENTS FACIÈS DE GYPSE À 30°C EN FONCTION DE LA VITESSE DE ROTATION. T <sub>0</sub> : TAUX DE DISSOLUTION POUR UNE VITESSE NULLE. T <sub>v</sub> : EFFET DE L'ACCÉLÉRATION SUR LE TAUX DE DISSOLUTION	206
TABLEAU 52 TAUX DE DISSOLUTION EN FONCTION DE LA VITESSE À 25°C POUR DES ESSAIS DE DISSOLUTION SUR DISQUE	211
TABLEAU 53 SYNTHÈSE DES PRINCIPALES CARACTÉRISTIQUES DES DIFFÉRENTS FACIÈS DE GYPSE RETENU POUR LA MISE AU POINT DU MODÈLE NUMÉRIQUE. LES PARAMÈTRES CHIMIQUES SONT DONNÉES POUR UNE TEMPÉRATURE DE 25°C. * LE MODULE ÉLASTIQUE EST INDIQUÉ ICI CAR INTÉGRÉ DANS LES PARAMÈTRES DU LOGICIEL DISROC MAIS N'A PAS ÉTÉ UTILISÉ POUR DÉFINIR LA RELATION ENTRE L'ASPECT MÉCANIQUE ET LA POROSITÉ	224
TABLEAU 54 PARAMÈTRES INITIAUX NÉCESSAIRE POUR LA MODÉLISATION HMC DU GYPSE SACCHAROÏDE PUR.	234
TABLEAU 55 CONVERSION DES PARAMÈTRES DÉPENDANTS DU TEMPS DE LA SECONDE À UNE PÉRIODE JOURNALIÈRE	236



TABLEAU 56 DÉTERMINATION DE LA SURFACE RÉACTIVE EN FONCTION DU DIAMÈTRE DE PORE POUR UNE POROSITÉ DE 10%	240
TABLEAU 57 PARAMÈTRES D'ENTRÉE UTILISÉ POUR LA MODÉLISATION DU GYPSE DANS LA DISSOLUTION D'UN MASSIF.	243
TABLEAU 58 DÉVELOPPEMENT DES PRINCIPAUX RÉSEAUX KARSTIQUES DANS LE GYPSE FRANÇAIS - CAVITÉS DU GYPSE DE PLUS DE 200 M DE DÉVELOPPEMENT. (BIGOT, 2010)-	303

# Glossaire

---

Aquiclude : désigne une formation qui est imperméable ou très peu perméable. Ces couches constituent souvent le plancher des aquifères (ex argiles).

Aléa : correspond aux phénomènes générant une catastrophe (par exemple les inondations, les effondrements...) causant des dégâts matériels ou humains avec une intensité variable (hauteur de crue par exemple). Les enjeux correspondent à la sensibilité des activités humaines dans la zone étudiée, par exemple des champs seront moins importants qu'une école en termes de priorité de sauvegarde.

Artésianisme : puit où le niveau d'eau monte plus haut que le niveau où on l'a rencontrée. Sens restreint : pluie où l'eau jaillit. Phénomène associée aux nappes captives (Foucault et al, 2014).

Bouche de cavage : Entrée d'une carrière souterraine à flanc de colline.

Butte témoin : Colline isolée par l'érosion soit d'un plateau formé par des sédiments horizontaux protégé par une couche résistante, soit d'un plateau volcanique (Foucault et al, 2014).

Clivage : aptitude d'un minéral ou d'une roche à se fendre facilement suivant une famille de plans parallèles bien définis. Ces plans de clivage traduisent des anisotropies mécaniques ; dans un cristal, ils sont liés à l'orientation des plans atomiques. (Foucault et al., 2014)

Coefficient de foisonnement : augmentation du volume de matériau excavée par décompression.

Comportement poromécanique : évolution d'un matériau soumis à une contrainte en fonction de ces propriétés de résistance et de porosité.

Diapirisme : phénomène de remontée à travers les couches sus-jacents par différence de densité ou comportement plastique (Foucault et al., 2014).

Doline : dépression circulaire de modelé karstique. (Foucault et al., 2014).

Durée d'induction : temps de latence entre l'ajout des réactifs et le démarrage d'une réaction chimique.

Epigénie : Transformation par remplacement d'un élément chimique sans modification de la forme.

Faciès (pétrographique) : faciès déterminé par les caractères minéralogiques et structuraux d'une roche, indépendamment de toute considération génétique. (Foucault et al., 2014)

Fontis : Effondrement du toit d'une cavité ou d'une galerie.

Fontis percé : Effondrement du toit d'une cavité ou d'une galerie affectant la surface.

Glissement rotationnel : type de glissement de terrain qui survient le long d'une surface «en cuillère».

Homométrique : Ce terme est utilisé pour qualifier les roches dont les éléments sont de tailles voisines (Foucault et al., 2014).

Karst : structure géomorphologique issue de l'érosion d'une roche carbonatée. (Foucault et al., 2014)

Kapton : film polymère thermiquement inerte pour une grande plage de température. Permet d'empêcher la réhydratation de l'anhydrite en DRX sans interaction chimique et thermique.

Ouvala : dépression formée par la coalescence de plusieurs dolines. (Foucault et al., 2014)

Paléo karst : karst fossile. (Foucault et al., 2014)

Poljé : dépression fermée d'origine karstique, à fond plat ou presque, de quelques kilomètres à dizaines de kilomètre. Elle correspond le plus souvent à une forme synclinale ou effondrée par failles, et ayant subi une morphogenèse karstique.

Régression : retrait de la mer en deçà de ces limites antérieures avec émerSIONS des zones plus ou moins vastes, dû soit à une baisse du niveau de la mer , soit à un soulèvement général du continent, soit à un apport important de sédiment, ces trois phénomènes pouvant se combiner. (Foucault et al., 2014)

Relaxation : La relaxation de contrainte la réduction de la contrainte appliquée pour maintenir la déformation constante.

Remontée hypogénique : circulation *per ascensum* d'une nappe d'eau alimenté par des eaux en profondeurs remontants. (Gilli, 2011)

Ruiniforme : Qui présente, sous l'action de l'érosion, un aspect de ruine.

Subsidence : enfoncement progressif pendant une assez longue période du fond d'un bassin sédimentaire, marin ou non. C'est ce phénomène qui permet en particulier l'accumulation sur de fortes épaisseurs de sédiments qui se sont cependant formés sous une faible profondeur d'eau. (Foucault et al., 2014)

Sebkhas : dépression en milieu désertique occupée par un lac salée temporaire issue de ruissellement ou de remontée de nappe. Il s'agit d'un milieu favorable à la précipitation des évaporites. (Foucault et al., 2014). Talweg : ligne du fond d'une vallée suivi par un cours d'eau, quand il existe. (Foucault et al, 2014).

Syngénétique : Minéralisation en même temps que la roche encaissante.

Taux de défruitement : proportion de matériau exploité. Ratio entre la surface des galeries par rapport à la surface totale.

Vadose : zone de percolation de l'eau dans le sous-sol sans faire partie de la nappe souterraine. (Foucault et al, 2014).

# Abréviations et notations

---

$\Omega_{\text{sat}}$	: degré de saturation d'une solution
$S_s$	: surface spécifique du gypse ( $\text{m}^2/\text{g}$ )
$V_m$	: volume molaire du gypse ( $7,469.10^{-5} \text{ m}^3.\text{mol}^{-1}$ )
$\tau_z$	: taux de précipitation du gypse ( $(\text{mol}.\text{s}^{-1})$ )
$k_s$	: constante de solubilité ( $\text{mmol}/\text{m}^2/\text{s}$ )
$G$	: énergie libre de Gibbs
$\mu$	: potentiel chimique
$\mu^0$	: potentiel chimique de l'espèce sous sa forme pure
$R$	: constante des gaz parfait
$T$	: température
$I$	: force ionique
$z$	: charge électrique d'un ion
$c_i$	: concentration d'une espèce chimique $i$
$a_i$	: activité ionique
$\gamma_i$	: coefficient d'activité ionique
$E_a$	: énergie d'activation
$k$	: constante de dissolution
$\tau$	: taux de dissolution
$\tau_d$	: taux de dissociation
$\tau_t$	: taux de transport
$k_d$	: coefficient de dissociation
$k_t$	: coefficient de transport
$C_{\text{sat}}$	: concentration de saturation
$D$	: coefficient de diffusion
$n$	: ordre chimique de la réaction
$E_p$	: épaisseur de la couche limite
$\Phi$	: porosité
$\nabla C$	: gradient de concentration
$\nu$	: viscosité
$w$	: vitesse de rotation ou vitesse angulaire
$Re$	: nombre de Reynolds
$\sigma_t$	: contrainte de cisaillement
$c$	: cohésion
$\sigma$	: contrainte normale

$\gamma_{vp}$  : distorsion viscoplastique  
 $N_v$  : exposant de viscosité,  
 $M_e$  : exposant d'écrouissage,  
 $K_r$  : coefficient de résistance,  
 $q$  : déviateur de contrainte  
 $B_0$  : facteur pré exponentiel de la loi de Norton Hoff  
 $R_c$  : résistance en compression  
 $E$  : module d'élasticité  
 $\varepsilon$  : déformation  
 $n_r$  : coefficient de rupture  
 $N_c$  : nombre de cycle  
 $T_c$  : cycle de fatigue  
 $\nu$  : coefficient de Poisson  
 $R_{tb}$  : résistance en traction  
 $\Omega$  : domaine de calcul d'un modèle numérique  
 $\Omega_s$  : phase solide d'un modèle  
 $\Omega_p$  : phase poreuse d'un modèle  
 $V_v$  : volume de vide  
 $V_0$  : volume totale en condition lagrangienne  
 $V_t$  : volume totale en condition eulérienne  
 $K_0$  : module de compressibilité du solide non poreux  
 $K_p$  : module de compressibilité du solide poreux  
 $K_{fl}$  : module de compressibilité d'un fluide  
 $b$  : coefficient de Biot  
 $\rho^f$  : densité d'un fluide  
 $\rho^s$  : densité d'un solide  
 $p_p$  : pression de pore  
 $g$  : accélération de la gravité  
 $S_s$  : surface spécifique  
 $Q$  : débit  
 $K$  : perméabilité  
 $k$  : perméabilité de Darcy  
 $c^*$  : constante de kozeny  
 $S_r$  : le taux de saturation  
 $N_t$  : porosité totale à l'eau  
 $MV$  : masse volumique

$N_p$  : porosité piégée à l'eau en conditions ambiantes  
 $N_{48}$  : porosité accessible à l'eau en conditions ambiantes  
 $N_{Hg}$  : porosité mercure  
 $C_d$  : coefficient de dispersion  
 $C_1$  : coefficient d'imbibition capillaire.  
 $F$  : fréquence de résonance  
 $IC$  : indice de continuité  
 $N_{fiss}$  : Porosité liée à la fissuration  
 $N_{pore}$  : Porosité liée aux pores  
 $tpm$  : tour par minute  
 $\tau_0$  : taux de dissolution estimée à une température donnée pour une vitesse nulle  
 $\tau_v$  : effet de la vitesse sur le taux de dissolution  
 $N_{karst}$  : porosité issues des chemins préférentiels  
 $LPNA$  : lumière polarisé non analysée  
 $LPA$  : lumière polarisée analysée  
 $E$  : module élastique  
 $E_{dyn}$  : module élastique déterminé par la technique de la vitesse du son  
 $E_{mod}$  : module élastique déterminé par la technique de la fréquence de résonance  
 $E_{stat}$  : module élastique déterminé par la résistance en compression  
 $V_p$  : vitesse de propagation des ondes P  
 $GST$  : gypse saccharoïde à interlits  
 $GSI$  : gypse matriciel  
 $GSII$  : gypse saccharoïde pur  
 $GA$  : gypse albastroïde  
 $GF$  : gypse fer de lance  
 $GO$  : gypse orogénique  
 $DRX$  : diffractométrie des rayons X  
 $ICP/OES$  : spectrométrie à plasma à couplage inductif / optical emission spectrometry  
 $FEM$  : code de calcul par éléments finis  
 $\underline{v}$  : vecteur vitesse  
 $n_{pore}$  : nombre de pores  
 $R_m$  : rayon moyen de pore  
 $\Phi_0$  : porosité initiale  
 $V_{sphère}$  : volume d'une sphère  
 $S_{c0}$  : surface initiale des pores  
 $P^{mol}$  : volume molaire



## **Introduction générale**





## INTRODUCTION GENERALE

### *Évaluation des risques de dissolution de formations géologiques par modélisation HMC*

Le travail effectué dans cette thèse vise à contribuer au développement de méthodes de modélisation Hydro-Mécanique et Chimique (HMC) pour la prise en compte des phénomènes de dissolution dans les formations gypseuses, afin de contribuer à une meilleure évaluation des risques de dommages aux structures géotechniques sus-jacentes, du fait de l'apparition de cavités naturelles et de risques d'effondrement.

Il existe actuellement de nombreux codes de calcul pour le dimensionnement des structures géotechniques (fondations, remblais...) ou leurs renforcements (tirant, boulonnage...). Ces logiciels permettent de prendre en compte les variations thermiques (stockage de déchets radioactifs, géothermie...) et hydrauliques (écoulement d'une nappe...), mais sans prendre en compte les réactions chimiques.

Une seconde famille de modèles dits « géochimiques » vise principalement à simuler les équilibres chimiques en phase aqueuse et leur évolution, ainsi que le transfert de masse dans les milieux poreux. Les modèles géochimiques prennent en compte les effets thermiques (qui impactent les cinétiques de dissolution) et hydrauliques (renouvellement du fluide réactionnel), mais il n'y a généralement pas de couplage avec les problématiques mécaniques. Les réactions chimiques dans les systèmes géologiques étant très variables en termes d'échelle, de cinétique de réaction, le développement d'un ensemble HMC est souvent effectué via des couplages entre des codes de calcul ou des logiciels et nécessitent le développement de modules d'interfaçage.

**L'objectif principal de cette thèse est d'intégrer directement dans un logiciel aux éléments finis dédié à la modélisation (Disroc), un ensemble d'équation permettant de prendre en compte directement la dissolution de phases solides au sein d'une formation géologique. Les paramètres d'entrées de ce modèle devront prendre en compte de résultats expérimentaux facilement atteignables et non destructifs comme la porosité à l'eau ou la vitesse de propagation des ondes. L'application de ce travail de thèse s'est faite sur les formations gypseuses, du fait de très nombreux dommages liés à des processus de dissolution plus rapide par rapport à d'autres roches.**

### *Formations gypseuses et aléas géotechniques*

Le gypse est une roche sédimentaire sulfatée de formule ( $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ), de la famille des évaporites. Les évaporites désignent les roches de la famille des sels (riches en chlorures et sulfates alcalins) issus de la précipitation d'éléments chimiques en solution sous l'effet d'une forte évaporation (Foucault et al., 2014). Le gypse est largement exploité pour ses nombreuses propriétés et applications dans l'industrie, notamment plâtrière. Le gypse est également utilisé dans la formulation du ciment, comme charge dans les peintures, dans l'industrie chimique (fabrication d'acide sulfurique) ou pour la fabrication d'engrais (Charles et al., 2020). Des études quant à l'intérêt de ce matériau peu perméable comme encaissant pour le stockage de gaz ( $\text{CO}_2$ , gaz domestiques) et pour le stockage de déchets nucléaires existent également (Thoraval et al., 2015; Khaledi et al., 2016; Wang et al., 2016; Yu et al., 2019; Li et al., 2020; Meng et al., 2022). L'extraction mondiale des roches sulfatées (gypse et anhydrite ( $\text{CaSO}_4$ )) est estimée à 150 millions de tonnes/an (Charles et al., 2020). La France est historiquement un important producteur, bien que le volume extrait diminue depuis les années 1990 (Figure 1). Le gypse en France est principalement extrait dans la région parisienne avec les 2/3 de la production nationale (Charmoille and Lecomte, 2018).

## INTRODUCTION GENERALE

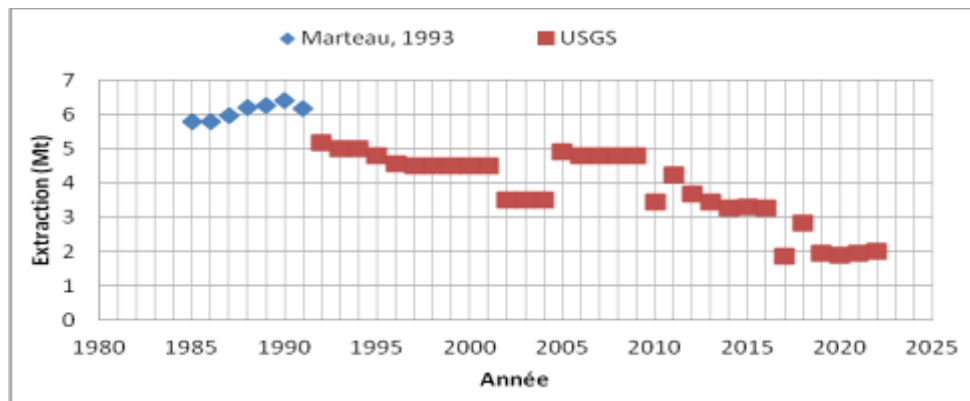


Figure 1 Évolution de la production française de gypse. Source (Marteau, 1993) et United States Geological Survey (USGS) <https://www.usgs.gov/centers/national-minerals-information-center/gypsum-statistics-and-information>

Ces activités d'extraction, dont une large partie est effectuée en souterrain, a conduit à la formation de vides importants dans le sous-sol. L'Inspection Générale des Carrières (IGC) évaluait pour la région parisienne dans les années 1980, la surface exploitée à plus de 800 hectares pour le gypse. Les premières exploitations connues remontent au XII<sup>ème</sup> siècle (Vachat, 1982; Du Mouza, 1975). Le taux de défrètement (voir glossaire) a pu atteindre de 60 à 85% en fonction des zones d'extraction (Auvray, 2003).

Comme l'ensemble des évaporites, le gypse est une roche avec une solubilité importante et il peut être soumis au phénomène de karstification (voir glossaire) (Nicod, 1976; Klimchouk et al., 1996a; Bigot, 2010; Gilli, 2011). Il existe ainsi de nombreuses cavités naturelles majoritairement de quelques dizaines de mètres à plusieurs centaines de mètres de développement au sein des masses de gypse. Ces cavités peuvent atteindre des surfaces impressionnantes supérieures au kilomètre en termes de développement (Klimchouk, 1996b). Ces cavités qu'elles soient anthropiques ou naturelles peuvent évoluer vers la forme de fontis provoquant des effondrements comme dans le massif de l'Hautil (94) (DRIRE, 1995) ou à Roquevaire (13) (Bertolus et al., 2017), ou des effets de tassements en surface. Ces vides et le risque d'effondrement associé sont le principal aléa rencontré en présence de gypse.



Figure 2 Photographie de remontée de fontis dans le gypse. (A) Effondrement de fontis à Roquevaire (13) (Cerema, 2018). (B) Affaissement de la chaussée de l'A15 (CEREMA, 2021). (C) et (D) Remontée de fontis en région parisienne (Lecomte, 2022) et (Direction régionale de l'industrie, de la recherche et de l'environnement, 1995)

## INTRODUCTION GENERALE

Ces phénomènes peuvent endommager les infrastructures dans ces secteurs (Figure 2). Ainsi l'autoroute A15 à l'ouest de Paris reposant pour partie sur les gypses de lère masse du Priabonien (Figure 3) est régulièrement affectée par des réactivations karstiques entraînant des affaissements de la chaussée. Nous pouvons également citer le fontis (voir glossaire) découverte sous la gare du Nord en 1975, d'un volume de 2 500 m<sup>3</sup> (Toulemont, 1974, 1987).

Dans les conditions naturelles, les nappes phréatiques au contact des couches de gypse sont en équilibre suite à de longues périodes de stabilisation des écoulements et leur saturation progressive. Cela implique des phénomènes de dissolution lente et active principalement en marge des strates gypseuses (Toulemont, 1987; Dumont, 2021; Zaier, 2021). Toutefois les modifications des écoulements (rabattement de nappe, fuite sur les réseaux de canalisations...) peuvent conduire à l'apparition de désordres de manière rapide. Le développement important de l'urbanisation (notamment en Ile-de-France) conduit à l'aménagement de zones potentiellement sensibles à cet aléa de fontis. Ainsi, **il convient de mieux connaître et anticiper l'évolution des roches gypseuses sur le long terme.**

Un second aléa (voir glossaire) plus méconnu auquel peut être associé le substrat gypseux est celui des glissements de terrain. En zone orogénique active, les évaporites sont soumises au phénomène de diapirisme (voir glossaire) et de plissement, qui vont faire évoluer le gypse vers des positions sub-verticales. De par son comportement plastique et les vides engendrés par sa dissolution, cette roche évaporitique peut contribuer activement aux phénomènes de glissement. Son rôle actif dans la formation des reliefs et des paysages vaut au gypse l'appellation de « couche savon » (Julian and Nicod, 1990; Bruno and Martillier, 2000; Travelletti et al., 2007; Guerrero and Gutiérrez, 2017).

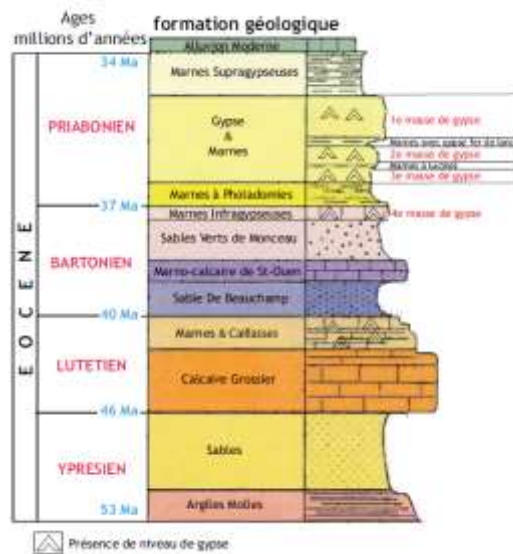


Figure 3 Log stratigraphique synthétique des formations géologiques de la région parisienne. Zaier,2021

Le gypse étant une roche à faible perméabilité, sa dissolution est souvent considérée comme un phénomène uniquement régressif à l'interface entre l'eau et la masse solide. La dissolution et l'écoulement ne sont pas considérés comme des phénomènes avec un gradient dans le matériau. Ainsi le développement des cavités est modélisé à partir d'écoulement préférentiel dans les fissures du massif (Figure 4) ou l'évolution de cavité naturelle ou anthropique. Le gypse est particulièrement étudié par les géochimistes du point de vue de la cinétique de dissolution et des équilibres de solubilité (soit une valeur importante de solubilité autour de 2,5 g/L à 20°C - Zaier, 2021) avec une sensibilité importante aux conditions physico-chimiques, comme la température qui augmente la solubilité. La vitesse d'écoulement a également un rôle impactant sur la cinétique de dissolution, qui peut être augmentée voire passer d'un système laminaire à un système turbulent.

## INTRODUCTION GENERALE

Ainsi, la formation de conduits karstiques (Figure 4) ou la dégradation de la structure interne du gypse soumis à un écoulement interne peuvent être tous deux des voies de dégradation du matériau dans le temps. Une dissolution induisant un gradient de porosité dans le matériau plutôt qu'une simple dissolution de surface ne contredit pas la mise en place d'un conduit karstique (chemin préférentiel de dissolution). Une dissolution non homogène à l'échelle des érpouvettes de gypse a été mise en évidence lors des essais présentés dans ce manuscrit (chapitre 3) pour certains types de gypse et certaines morphologies de grain. L'origine de cette non homogénéité peut être attribué à l'hétérogénéité du matériau.

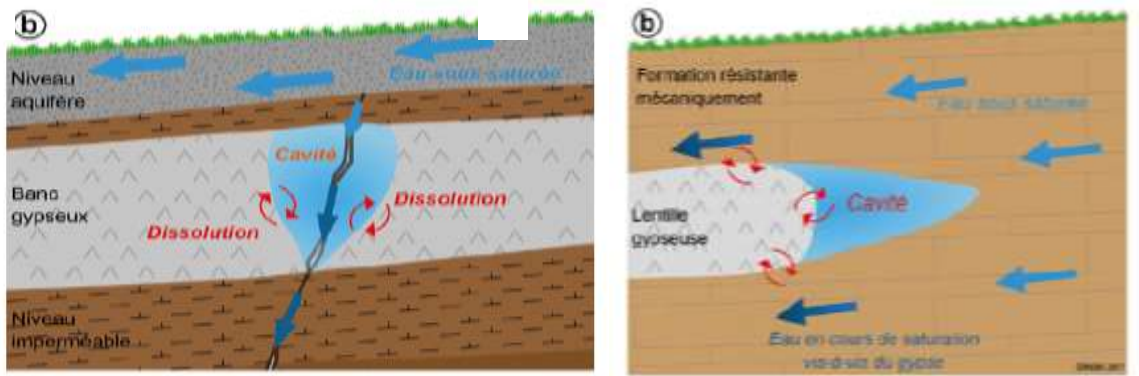


Figure 4 Schéma de la dissolution du gypse par percolation le long d'une fissure (a) et par un écoulement sous saturée (b) conduisant à la formation de cavité (Charmoille and Lecomte, 2018).

### *Faciès du gypse et propriétés pétrophysiques*

Il existe en effet différents faciès pour le gypse, dont les plus connus sont le gypse maclé « fer de lance », le gypse maclé « pied d'alouette » ou encore la pierre d'albâtre issu d'orientation de macles différentes mais également de structuration (anguleux/arrondis, taille des minéraux) liés aux conditions de précipitations et à la composition de l'eau mère. Il s'agit des formes plus esthétiques et plus massives, se composant de cristaux centimétriques. Il existe également une forme saccharoïde composée de cristaux micro à millimétriques avec une phase de liaison (matrice). La distinction entre ces faciès n'est pas systématique dans le cas des études de terrain alors que leurs propriétés pétrophysiques peuvent être assez différentes. Les formes albastroïdes sont généralement non poreuses alors que les formes saccharoïdes peuvent dépasser les 10% de porosité. Le terme de « saccharoïde » utilisé de manière générique pour désigner l'ensemble des formes non massives du gypse, peut lui aussi être subdivisé en sous-ensembles en fonction de la phase de liaison présente ou de la taille des minéraux, ces caractéristiques particulières pouvant impacter fortement les propriétés du matériau notamment hydromécaniques. La morphologie « matriciel » telle que définie par Zaier (2021) est normalement classée dans les gypses saccharoïdes : il s'agit d'un faciès essentiellement composé de gypse de type microcristallin où s'insèrent des grains sphériques de type saccharoïde. Cette distinction avait déjà été évoquée par Toulemont (1986) dont la description d'un « gypse farineux » à texture micro-saccharoïde et de grains lenticulaires semblent correspondre à la forme matricielle de Zaier (2021). Bien que postérieur, le terme de matriciel sera repris dans ce manuscrit : cela montre qu'une classification « minimaliste » selon des formes saccharoïde ou massive semble limitante dans le cas d'une étude de l'évolution des propriétés pétrophysiques des roches dans un contexte de dissolution.

Les différents faciès de gypse sont souvent peu détaillés dans la littérature bien que les valeurs des paramètres physiques, par exemple, montrent une grande diversité (par exemple de 0 à 20% de porosité).

**Le premier objectif de cette thèse a donc été de caractériser différents faciès de gypse pour en déterminer la structure et les propriétés poromécaniques notamment la porosité, le module élastique afin d'obtenir des valeurs pour le modèle numérique objet**

## INTRODUCTION GENERALE

de ce travail. Lors de cette caractérisation, il a été établi une base de classification en fonction des faciès considérés sur des critères de granulométries qui affectent la structure porale et la résistance mécanique. La littérature présente en effet de nombreux travaux sur le gypse mais souvent avec peu de précision sur la morphologie du gypse étudié ce qui conduit à de fortes disparités de propriétés.

### *Étude expérimentale du processus et de la cinétique de dissolution du gypse*

Une campagne expérimentale visant à montrer la circulation hydrique dans le gypse a été mise en place via des cellules de percolation. Cette campagne vise également à suivre la dégradation des éprouvettes testées pour mettre en évidence la formation d'un gradient de dissolution interne, sa profondeur et ainsi obtenir des données pour la comparaison des résultats numériques à l'expérimentation (porosité), mécanique (via des méthodes non destructives et une méthode locale) et chimique.

La question de l'évolution des surfaces avec la dissolution et l'initiation d'une dissolution non homogène à partir de la présence d'interlits, de quartz a été investigué à partir d'une expérience de dissolution sur plaque développée en parallèle de l'axe principal de ce travail. L'objectif de ce montage est de rechercher l'origine de l'initiation des chemins préférentiels (insolubles...).

Une étude sur la cinétique de dissolution a également été effectuée pour chaque faciès. L'objectif est ici de déterminer les paramètres de dissolution du gypse ( $k$ ,  $n$ ...) et leur sensibilité aux conditions du milieu réactionnel (température, vitesse...). Ces paramètres permettront d'**introduire une cinétique de dissolution réaliste dans le modèle numérique**. Cette partie permettra également de mesurer la sensibilité de chaque faciès à la dissolution et si cette dernière varie en fonction de la structure et de la texture minéralogique des cristaux de gypse.

L'ensemble de ce travail expérimental a ainsi permis de caractériser les propriétés pétrophysiques de six faciès de gypse et d'acquérir les valeurs expérimentales nécessaires au développement d'un modèle numérique HMC (porosité, diamètre de pore...) (Figure 5). Les constantes contrôlant la dissolution du gypse ont également été implémentées pour permettre de modéliser une dissolution active du gypse. Le développement de ce type de modèle dans le cas de massif gypseux permet de mieux appréhender l'évolution d'une zone soumise aux remontées de fontis, pour proposer ultérieurement une adaptation optimisée de ces zones aux activités humaines (en termes de gestion des eaux au cours de travaux par exemple).

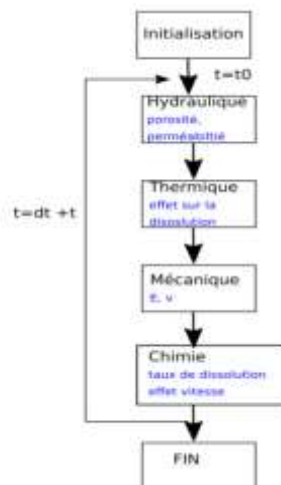


Figure 5 Schéma des chaînes de module de calcul du logiciel Disroc.

## INTRODUCTION GENERALE

### *Plan du manuscrit*

Ainsi ce mémoire de thèse se compose de quatre chapitres :

- Le premier chapitre synthétise un certain nombre de généralités et de résultats issus de la littérature sur le matériau gypseux et ses propriétés. Après la description de la formation de cette roche, la (porosité..) des roches gypseuses et les aléas induits en présence de cette roche sont détaillées. Il est principalement basé sur les matériaux gypseux sélectionnés de l'Ile-de-France et des Alpes Françaises dont sont issus des faciès étudiés dans ce travail de thèse.
  - o Les deux parties suivantes de ce chapitre rassemblent les résultats des études portant sur la dissolution du gypse dans différents contextes (en montrant l'impact de la température, de la vitesse d'agitation sur la solubilité) et ses propriétés poromécaniques (soit la porosité, la vitesse de propagation des ondes).
  - o Une dernière partie dresse par un état de l'art sur les modèles thermo-hydro-mécaniques et chimiques (HM+C) dans la littérature et décrit les équations associées à ces calculs ainsi que celles qui ont été retenues dans ce travail de thèse, pour le développement numérique d'un modèle HMC à l'aide du code aux éléments finis Disroc.
- Le second chapitre est consacré à la description des matériaux étudiés et à la méthodologie expérimentale mise en place pour atteindre les objectifs.
  - o Ce chapitre présente les origines géographiques et géologiques des six gypses étudiés.
  - o Les méthodes et protocole utilisés dans cette thèse pour caractériser les échantillons et suivre leurs altérations (porosimétrie à l'eau, au mercure, vitesse de propagation d'ondes ...) sont décrites.
  - o Les montages expérimentaux développés pour cette thèse, comme un banc de percolation pour simuler la dégradation du gypse soumis à un écoulement ou un essai de dissolution sur plaque sont décrits. Pour ces derniers, il a fallu tenir compte du caractère très soluble du gypse et de la difficulté à simuler en laboratoire à petite échelle sur des éprouvettes centimétriques des phénomènes qui peuvent présenter un effet d'échelle (comportement de fissures macro).
- Le troisième chapitre présente l'évolution des faciès de gypse retenus dans ce travail après avoir été soumis à une altération par percolation d'eau (pure) sous saturée. Des éprouvettes de gypse sont caractérisées avant et après percolation pour les paramètres de porosité (volume, dimension...) et de résistance comme le module élastique. La cinétique de dissolution des différents types de gypse étudiés sous forme de poudre est étudiée en parallèle en faisant varier les conditions physico-chimiques (températures, vitesse d'agitation et granulométrie).
- Enfin le quatrième chapitre décrit les équations développées et intégrées au code aux éléments finis Disroc dans ce travail de thèse et les modélisations effectuées.

La conclusion de cette thèse présentera une synthèse de l'ensemble des éléments acquis au cours de ce travail sur la diversité du gypse, l'intérêt d'en étudier la morphologie et la structure, la faisabilité d'une dégradation en profondeur et pas que d'une régression de surface. Elle donnera également une synthèse du modèle développé ici ainsi que des perspectives d'améliorations du modèle ou des champs d'explorations possibles sur la dissolution du gypse.

# INTRODUCTION GENERALE



**Chapitre 1 : État de l'art sur le gypse,  
ses propriétés et son altération**



Ce premier chapitre vise à décrire le matériau d'étude (le gypse) et ses propriétés. Il s'articulera en quatre parties. La première partie s'attache à décrire sa formation et les aléas dus à son évolution. Il est décrit les propriétés minéralogiques du gypse et la diversité morphologique des grains notamment issue des conditions de formations (composition chimique, temps...). Cette diversité aura une influence sur la structure de la porosité.

Les principaux aléas seront abordés dans leurs fonctionnements généraux, dont le principal est le phénomène de fontis. Ce phénomène à l'origine des effondrements peut avoir une cause naturelle ou anthropique. Les cavités liées aux activités humaines ont pour origine l'intense exploitation souterraine du gypse pour la production de plâtre. Depuis plusieurs siècles, la région parisienne est un centre important d'exploitation (70% de la production française). Mais les piliers de ces structures tendent à se dégrader et rompre, générant ainsi des fontis. Le gypse de par sa solubilité élevée est une roche sensible au phénomène karstique. Nous présenterons également ce phénomène, ses localisations et quelques-unes de ses particularités. Nous présenterons également le rôle du gypse dans les glissements de terrain à travers la description de 2 mouvements présents sur le territoire métropolitain.

La seconde partie s'attachera à la description des propriétés chimiques du gypse vis-à-vis de la dissolution. Nous déterminerons à travers la littérature la solubilité du gypse en fonction de la température, de la vitesse de rotation... Nous nous intéresserons aussi à la cinétique de dissolution et au régime mixte de dissolution sous influence de l'effet de la température et de la vitesse d'écoulement.

Le phénomène dit de « whormhole » sera également décrit. Ce processus est à l'origine de l'initiation du karst. Nous avons étudié ce phénomène suite à son développement lors de nos essais pour certains faciès de gypse.

Une troisième partie constituera une recherche bibliographique sur le comportement poromécanique (glossaire) du gypse et la description des paramètres (porosité, vitesse du son...). Nous mettrons en avant la variabilité des propriétés, notamment dans la structure porale et de son effet sur la mécanique. Il sera également abordé un historique de quelques études sur la dégradation du gypse. Cette revue bibliographique nous permettra d'appréhender le gypse et ses propriétés pour contextualiser notre sujet. Notamment vis-à-vis de la faisabilité de mettre en place un gradient de dissolution au travers du gypse.

Enfin une quatrième partie présentera les principes fondamentaux des modèles numériques et les équations en découlant. Elle présentera également quelques approches numériques développées dans le cadre de la mise au point de modèle HMC et qui ont servis de base de réflexion au développement de notre modèle.

### A. Le gypse, genèse et aléa

#### I. Formation et localisation du gypse

Cette première partie de la bibliographie donne un certain nombre de généralités sur le gypse. Son processus de formation et sa cristallographie, ainsi que sa répartition à la surface de la Terre sont décrites, ainsi que son rôle dans les risques naturels. Quelques exemples permettent d'aborder les deux principaux aléas liés au gypse, à savoir les affaissements et les glissements de terrain. La formation de cavités liées à l'activité extractive est abordée de même que le phénomène parakarstique naturel qui peut se développer dans les massifs gypseux.

## CHAPITRE 1 : ETAT DE L'ART

Le gypse est une roche sédimentaire de la famille des évaporites. Il est fréquemment rencontré sur le territoire métropolitain et à travers le monde (Figure 6 et Figure 7). Les évaporites sont des dépôts riches en chlorure et sulfate alcalin. Les formations gypseuses sont issues de phénomènes d'évaporation intense et souvent de régression marine ( voir glossaire) (Foucault et al., 2014). Sur le territoire métropolitain, la majorité des formations de gypses sont localisées dans le bassin Parisien. Une brève histoire de ce bassin sédimentaire, ainsi qu'une échelle chrono-stratigraphique (Cohen et al., 2023) sont fournis en annexe I.1.A et I.1.B.



Figure 6: Principaux gisements de gypse en France et de leur exploitation (Charmille et Lecomte, 2018)

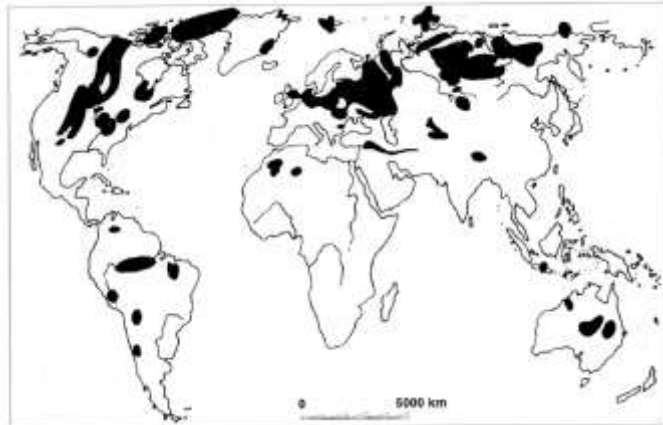


Figure 7. Gisements gypsifères d'âge précambrien et Paléozoïque (Klimchouk et al. 1996).

La genèse du gypse peut avoir différentes origines requérant des conditions initiales similaires. Elle nécessite un bassin fermé ou quasi fermé de faible profondeur avec des conditions climatiques chaudes, afin de produire une forte évaporation (Figure 8). Le contexte fermé ou sans apport suffisant d'eau pour compenser l'évaporation permet la création d'une eau fortement concentrée appelée saumure. Une saumure correspond à une masse d'eau dont les éléments dissous composent 35% de la masse de la solution totale. Les dépôts lors de la précipitation des différents composés de type évaporite se font de manière concentrique, l'évaporation réduisant la surface et le volume de la masse d'eau considérée.

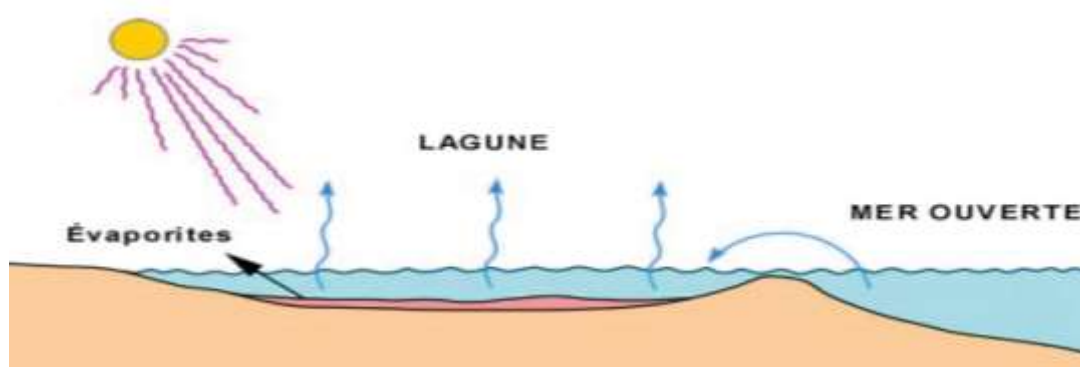


Figure 8 : Schéma de la diagenèse du gypse et séquence de précipitation des évaporites.

Source: [www.ggl.ulaval.ca](http://www.ggl.ulaval.ca)

Une fois la concentration de saturation dépassée en solution, la précipitation se déclenche. Cette précipitation se localise le plus souvent dans des lagons ou des mers continentales mais peut également intervenir en conditions continentales (sebkhas ou lacs salés)(Nicod, 1976; Deconinck et al., 2016; Auvray, 2003). Le gypse peut également être formé en condition hydrothermale mais ce mode ne sera pas abordé dans ce travail.

## CHAPITRE 1 : ETAT DE L'ART

De manière classique, la précipitation des minéraux se fait selon un ordre prédéterminé en fonction des taux de saturation des éléments présents et de l'avancement de l'évaporation. On parle alors de série évaporitique (Deconinck et al., 2016; Warren, 2010; Fontes, 1974). Ces séries sont souvent interrompues (incomplètes) par des apports d'eaux « fraîches » bloquant momentanément la précipitation par dilution des éléments présents. Le cycle recommence ensuite jusqu'à évaporation totale de la masse d'eau.

La série évaporitique la plus classique commence par la précipitation de la calcite ( $\text{CaCO}_3$ ), puis vient celle du gypse ( $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ) lorsque le volume d'eau restant est de 35 à 20 % du volume initial (Boulvain, 2011). Entre 20 et 10 % précipite l'anhydrite ( $\text{CaSO}_4$ ) et enfin de l'halite ( $\text{NaCl}$ ) quand le volume est inférieur à 10% (Figure 9). La précipitation de l'halite puis des sels magnésiens ( $\text{MgSO}_4$ ), des sels potassiques ( $\text{KCl}$ ) et enfin des sels de bore peut intervenir en fonction de la composition de la saumure (Charmoille et Lecomte, 2018). Ainsi le gypse est souvent précipité en minces strates alternant avec les autres minéraux de la série.

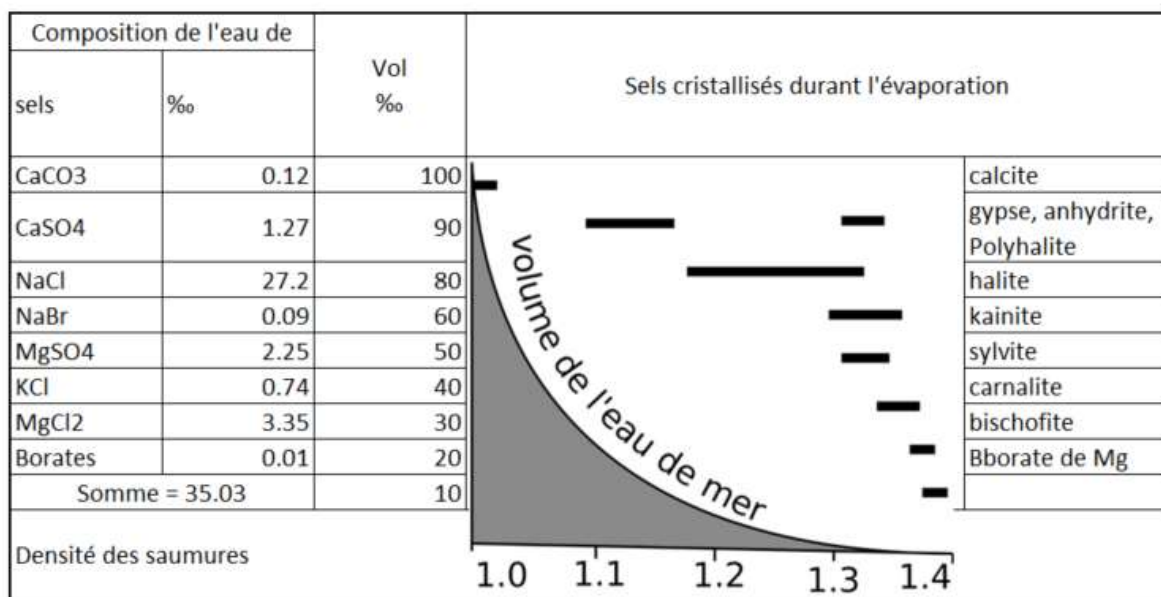


Figure 9. Série évaporitique complète de l'eau de mer. D'après (Deconinck et al., 2016)

Les formations gypseuses peuvent également être massives et stratifiées ou en lentilles au sein des séries sédimentaires. Cette différence intervient selon les conditions topographiques et le milieu de dépôt lors de la précipitation. Des bancs massifs et stratifiés nécessitent des volumes et surfaces de précipitation importantes ce qui renvoie à un milieu marin (exemple de la crise messénienne de -5,96 à -5,33 Ma). Il s'agit d'un épisode d'assèchement de la mer Méditerranée via la fermeture du détroit de Gibraltar. L'origine de cet épisode est encore débattue, mais elle a entraîné le dépôt de roche saline (dont du gypse), sur d'importantes surfaces ( $1,15 \cdot 10^6 \text{ km}^2$ ) et près d'un kilomètre d'épaisseur (Warren, 2010; Deconinck et al., 2016).

Les lentilles ou formations discontinues se trouvent plutôt dans des contextes isolés comme dans les dépressions topographiques (des lagons, lacs...). Ainsi le contexte géodynamique peut être une mer fermée (comme la mer Morte ...), des zones côtières de marges continentales ou de bassins proches de l'océan ouvert. Des milieux lacustres peuvent également être le lieu de précipitation d'évaporites (ex sebkhas rencontrées couramment dans le Nord de l'Afrique). Le mode de dépôt des grands bassins gypsifères comme ceux de l'Est de la France est encore débattu mais trois hypothèses sont privilégiées (Deconinck et al., 2016) (Figure 10) :

- **Bassin profond avec un faible recouvrement (Figure 10A)** : précipitation dans des zones isolées de l'océan ouvert par subsidence (voir glossaire) mais avec des apports périodiques d'eau de mer avec également des contacts avec des nappes d'eau salée sous influence océanique. Il s'agit du modèle proposé pour l'épisode Messénien.
- **Bassin peu profond avec un faible recouvrement d'eau (Figure 10B)** : Ces bassins seraient d'immenses sebkhas isolées et asséchées. La masse d'évaporite précipitée est directement reliée à l'épaisseur d'eau initiale dans le bassin.
- **Bassin profond avec un recouvrement d'eau important (Figure 10C)** : Il s'agit de tranche d'eau océanique soumis à une évaporation intense entraînant une forte précipitation d'évaporite s'accumulant sur le fond marin. C'est dans cas que peuvent se former des strates importantes de gypse comme celles du Trias. Des interruptions de stratifications avec des interlits argileux (arrivées d'eau chargée de sédiments) peuvent être observées.

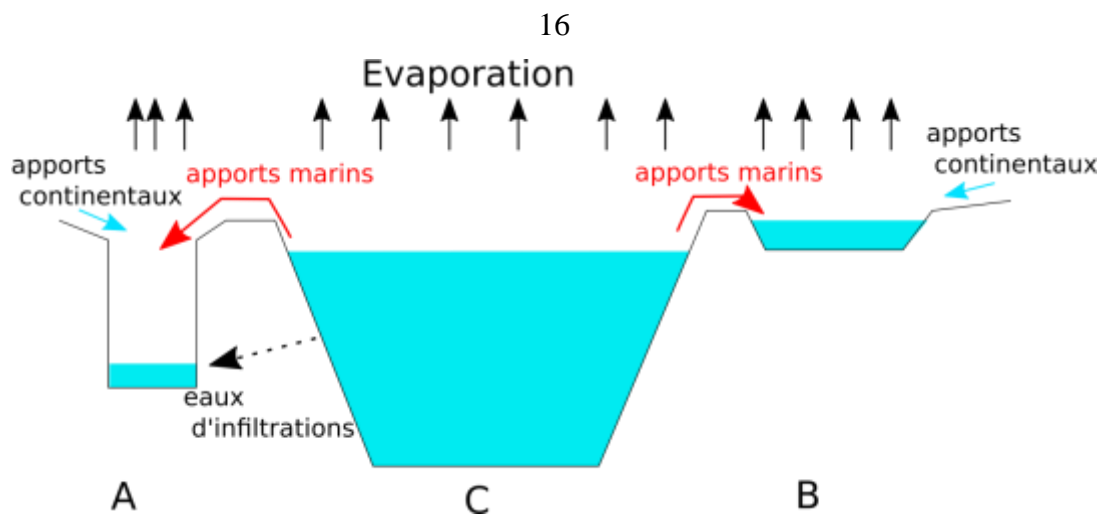


Figure 10 Schéma de différentes hypothèses expliquant la précipitation d'importantes masses de gypses. D'après (Deconinck et al., 2016)

Ces formations nécessitent également des périodes de précipitation importantes avec des apports d'eau réguliers. Considérant une eau de mer avec une salinité de l'ordre de 35g/l, seulement 60 m d'évaporites pour 1000 m d'eau évaporée sont produits dont 50 cm de gypse (Deconinck et al., 2016), d'où l'importance des apports réguliers d'eau fraîche pour expliquer la constitution de masse homogène de gypse d'épaisseur décamétrique comme en Ile de France.

Les formations gypsifères en France (Figure 6) sont principalement datées de 2 périodes. Le Trias (-252 à -201 Ma), souvent indifférenciés dans les cartes géologiques. Ces couches géologiques sont surtout localisées dans la partie Est de la France (Lorraine, Alpes...) et se sont formées sous l'influence de la paléo Téthys et du domaine germanique.

La seconde période est le Paléogène, plus particulièrement le Lutétien (-47,8 à -41,2 Ma) et le Priabonien (-37,8 à -33,9 Ma). Ces dépôts sont principalement représentés dans la région parisienne à l'issue de plusieurs cycles de transgressions régressions avec une influence de l'océan Atlantique et de la Manche. Une description détaillée de l'histoire géologique de ces dépôts (précipitations, histoire géologique) est donnée en début de chapitre 2 avec le choix des échantillons.

## II. Morphologie et cristallographie du gypse

Après avoir décrit le contexte géologique du gypse et son mode de formation, il est abordé ici sa structure cristallographique et l'influence de paramètres externes sur sa structure.

### 1) *Structure cristallographique*

Le gypse est un sulfate de calcium dihydraté ( $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ), avec une masse molaire de 172,17 g/mol (Zaier, 2021) avec CaO (32,54%),  $\text{SO}_3$  (46,51%) et  $\text{H}_2\text{O}$  20,93% (Klimchouk et al., 1996a). Les liaisons mises dans la structure du gypse sont principalement des liaisons faibles (Auvray, 2003; Caselle et al., 2022) de type:

- Van der Waals : liaisons entre molécules d'eau.
- Électrostatiques : attractions entre les ions  $\text{Ca}^{2+}$  et  $\text{SO}_4^{2-}$ .

Les liaisons mettant en jeu les molécules d'eau sont faibles et peuvent être facilement éliminées à partir de  $55^\circ\text{C}$  (il est généralement préconisé un séchage du gypse à une température maximale de  $40^\circ\text{C}$  pour la préparation du matériau afin de ne pas dégrader sa structure). Cette déshydratation s'accélère à partir de  $80^\circ\text{C}$  (Massieu, 1996). Ainsi, le gypse peut naturellement se déshydrater pour former de l'anhydrite ( $\text{CaSO}_4$ ). Cette déshydratation peut intervenir par enfoncement / recouvrement des couches gypseuses ou dans un contexte orogénique, comme celui des Alpes ou du Jura (Fabre et Dayre, 1982). L'augmentation des conditions de pression et de température lors de son enfouissement ou de son recouvrement dans d'autres couches géologiques va naturellement le déshydrater avec l'enfouissement. Lors de sa déshydratation, le gypse peut donner de la bassanite ( $\text{CaSO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$ ) ou de l'anhydrite ( $\text{CaSO}_4$ ) en fonction de la perte d'une ou de deux molécules d'eau (Figure 11). Ce phénomène est réversible par simple remise en condition ambiante ce qui entraîne la réhydratation de la roche au contact de l'air humide.

La cristallisation du gypse produit une maille monoclinique tabulaire (Auvray, 2003) et les cristaux résultants ont une faible dureté (dureté de 2 sur l'échelle de Mohs pour une densité moyenne de  $2,3 \text{ g/cm}^3$ ). Il en résulte une structure en « feuillet » contenant les ions calcium et sulfate. Les molécules d'eau s'insèrent entre les plans et les maintiennent liés entre eux (Figure 11). Le gypse lors de sa cristallisation génère 3 plans de clivage (voir glossaire) (Figure 12). Le clivage principal (parfait) correspond au plan [010] et les clivages secondaires aux plans [100] et [011].

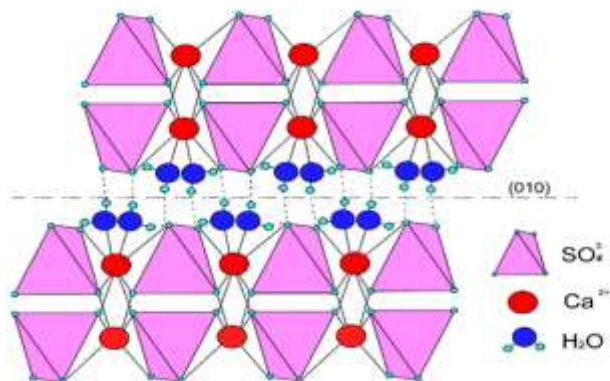


Figure 11 : Structure cristallographique du gypse (Caselle et al., 2022)

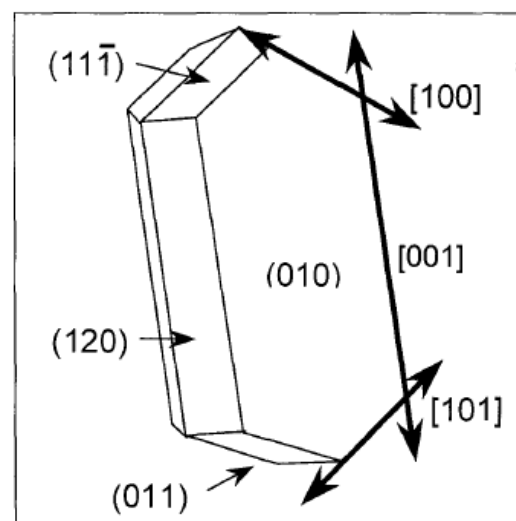


Figure 12 : Structure aciculaire d'un cristal de gypse (Bosbach and Rammensee, 1994)

## 2) Précipitation du gypse

Comme précédemment énoncé, le gypse est formé à partir de la précipitation des ions calcium ( $\text{Ca}^{2+}$ ) et sulfate ( $\text{SO}_4^{2-}$ ) dans une solution sursaturée. Le degré de saturation ( $\Omega_{\text{sat}}$ ) à partir duquel le gypse peut précipiter est d'environ 1,5 (Rosenberg et al., 2018). Il s'établit à partir des coefficients d'activités ioniques mises en jeu (a), d'après la relation (éq1.A.1)(Rendel et al., 2018; Reiss et al., 2021; Zaier, 2021).

$$\Omega_{\text{sat}} = \frac{a_{\text{Ca}^{2+}} \cdot a_{\text{SO}_4^{2-}} \cdot a_{\text{Ca}^{2+}}^2}{(a_{\text{Ca}^{2+}} \cdot a_{\text{SO}_4^{2-}} \cdot a_{\text{Ca}^{2+}}^2)_{\text{eq}}} \quad (\text{éq1.A.1})$$

Les principales méthodes d'étude de la précipitation du gypse utilisent le microscope à force atomique (AFM) (Finot et al., 2001), le microscope électronique à transmission (TEM), la diffraction des rayons X aux petits angles (SAXS) et aux grands angles (WAXS). Ces méthodes se concentrent principalement sur le début de la précipitation à l'échelle nanométrique et micrométrique (Reiss et al. 2021). D'autres méthodes consistent à suivre l'évolution de la concentration en réactifs dans la solution en cours d'expérience et ensuite à observer les cristaux néoformés (Rendel et al. (2018)). Il existe 2 théories de nucléation couramment rencontrées pour les minéraux (Figure 13).

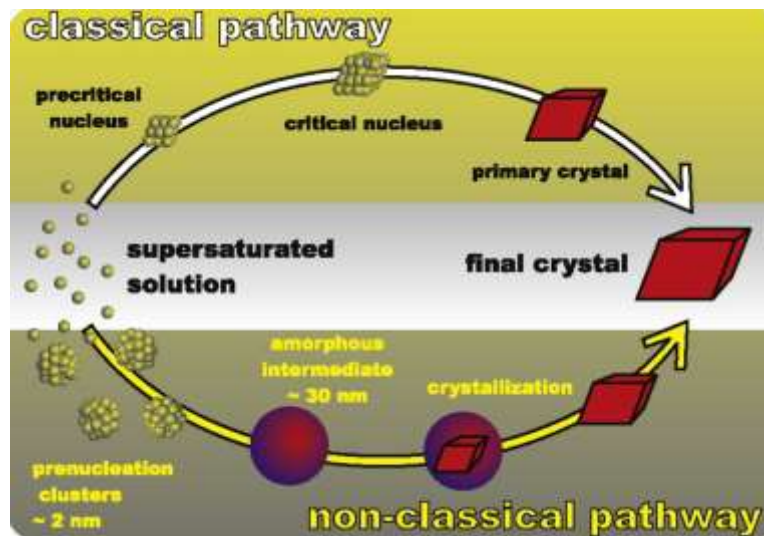


Figure 13 Schéma des théories classiques et non classiques de nucléation. Source (Gebauer and Cölfen, 2011)

La première appelée « théorie classique de nucléation » (TCN) correspond à la genèse d'« un noyau » métastable pouvant, soit se dissoudre si la solution redevient sous saturée, soit s'étendre par agglomération d'éléments chimiques via les énergies de tensions interfaciales. À partir d'une taille critique, le noyau devient un cristal stable. La genèse se réalise en un processus unique et en une seule étape où le cristal obtient ses propriétés. En fonction des conditions énergétiques, le noyau peut apparaître de manière spontanée (nucléation homogène) à partir d'une solution légèrement sursaturée ou à partir de surface solide déjà présente en solution dans le cas d'une solution fortement sursaturée (nucléation hétérogène) (Reiss et al., 2021, 2019; Rendel et al., 2018) (Figure 14). Des hypothèses quant à la possible nucléation à partir de nanoparticules qui rendraient la nucléation homogène non pertinente existent également (Oshchepkov et al., 2020; Reiss et al., 2021; Trukhina et al., 2022).

La seconde théorie dite « théorie non classique de nucléation » (TNCN) se divise en deux étapes. Une première étape voit se former des amas de pré-nucléation nanoscopique, aux structures différentes du cristal stable. Les amas vont ensuite interagir pour former le cristal final (Gebauer and Cölfen, 2011; Shen et al., 2020a).



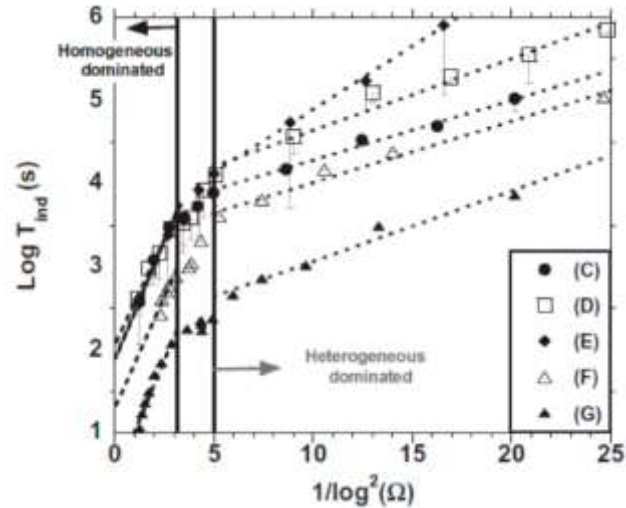


Figure 14 Effet du degré de sursaturation sur le type de nucléation et la durée d'induction (voir glossaire) pour différentes compositions d'eau de mer. Source (Reznik et al., 2012)

La précipitation du gypse suit quant à elle la théorie classique de nucléation (TCN) avec l'apparition de nucléus (hétérogène et/ou homogène) suivie d'une phase de croissance des noyaux. Un nucleus homogène est un nucleus de même composition que le produit attendu de la réaction. En l'absence de phase solide préexistante, il faut une période d'induction avant de voir apparaître les premiers nucléus et que s'initie réellement la précipitation. La période d'induction correspond au temps entre le début de l'expérience et l'apparition des premiers cristaux de gypse. Cette durée d'induction sera dépendante de divers paramètres comme des surfaces du réacteur expérimental (matériau, rugosité...) ou le degré de sursaturation (Rendel et al., 2018). La vitesse d'apparition des cristaux est appelée taux de nucléation. Il dépend de plusieurs facteurs :

- le taux de sursaturation,
- l'énergie inter faciale solide/liquide,
- la présence d'activateurs ou inhibiteurs éventuels de la précipitation (comme des éléments qui peuvent se fixer par adsorption sur les sites de croissance cristalline),
- la température,
- la solubilité du minéral considéré selon les coefficients stœchiométriques.

L'agitation de la solution qui contient les éléments a un impact non pas sur le taux de nucléation mais sur les dimensions des cristaux. Sans agitation, Rendel et al. (2018) obtiennent des particules de gypse sphérique de l'ordre de 1 mm de diamètre.

Dans le cas d'une solution agitée, les minéraux prennent une forme allongée, de 50 à 100  $\mu\text{m}$  et diminue avec l'augmentation de la vitesse d'agitation, l'agitation en rotation cassant les minéraux.

De nombreux travaux visent la mise au point de modèle de nucléation, mais de nombreux facteurs comme des conditions expérimentales complexes, des échelles d'observation variables (macro/micro/nanoscopique), la composition et la force ionique des saumures tendent à complexifier la mise au point d'un modèle consensuel de précipitation du gypse.

Toutefois, une équation générique (éq1.A.2) a été proposée pour décrire le système classique et être utilisée selon les besoins (Brandse et al., 1977; Zhang and Nancollas, 1992; Bosbach and Rammensee, 1994; Reznik et al., 2012; Rendel et al., 2018; Reiss et al., 2021). Par exemple, Rendel et al. (2018) considère pour ses conditions expérimentales que la partie homogène est négligeable.

$$J_{total} = b_{hom} \cdot C_{sat} \cdot \exp \left\{ -\frac{\beta V_m^2 \sigma^3 N_A f(\theta)}{(RT)^3 \ln^2 \Omega} \right\} + b_{het} \cdot C_s \cdot \exp \left\{ -\frac{\beta V_m^2 \sigma^3 N_A f(\theta)}{(RT)^3 \ln^2 \Omega} \right\} \quad (\text{éq1.A.2})$$

Avec  $J_{total}$  : taux de nucléation,  $\Omega$  : degré de saturation,  $\sigma$  : tension interfaciale,  $C_{sat}$  : concentration de saturation,  $\beta$  : facteur de forme géométrique,  $V_m$  : volume molaire ( $7,469 \cdot 10^{-5} \text{ m}^3 \cdot \text{mol}^{-1}$ ),  $R$  : constante des gaz parfaits,  $T$  : température,  $N_A$  : nombre d'Avogadro,  $\theta$  : facteur de correction pour la partie hétérogène de la nucléation et  $b_{hom}$  et  $b_{het}$  : coefficients de vitesse pré-exponentiels indépendants de la solubilité de la nucléation homogène et hétérogène.

La seconde phase correspond à la croissance et au développement des minéraux et elle est contrôlée par la loi donnée dans l'équation (éq1.A.3) (Rosenberg et al., 2012; Reznik et al., 2012; Rendel et al., 2018; Reiss et al., 2019). Comme pour la dissolution, la précipitation du gypse semble gouvernée par un phénomène à double cinétique.

$$\tau_z = S_s [k_{far} \cdot (\Omega^{1/\nu} - 1)^{n_{far}}] + [k_{close} \cdot (\Omega^{1/\nu} - 1)^{n_{close}}] \quad (\text{éq1.A.3})$$

Avec  $\tau_z$  : taux de croissance du minéral en condition hétérogène ( $\text{mol} \cdot \text{s}^{-1}$ ),  $S_s$  : surface spécifique du minéral ( $\text{m}^2$ ),  $k$  : coefficient d'hétérogénéité ( $\text{mol} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^2$ ),  $n_{far}$  : ordre de la réaction (environ 10),  $n_{close}$  : ordre de la réaction (environ 2),  $\nu$  : nombre d'ions intervenant dans la formule cristalline (sans les molécules d'eau) c'est-à-dire 2 dans le cas du gypse. « close » et « far » correspondent à l'écart par rapport à l'équilibre.

### 3) Variabilité des faciès

De par son mode de formation par précipitation, le gypse présente de nombreux faciès liés aux conditions du milieu et de la composition de la saumure (Figure 15). La présence de NaCl par exemple favorise la forme sphérique des grains (Jaworska, 2012; Mees et al., 2012; González-Acebrón et al., 2014; Reiss et al., 2021; Caselle et al., 2022). Dans le cas d'une solution presque pure, la précipitation génère principalement des cristaux allongés et droits (Gominšek et al., 2005). La composition de la saumure peut également jouer un rôle sur la cinétique de précipitation du gypse et donc indirectement sur la taille des grains. Par exemple, Ossorio et al. (2017) ont observé que les ions magnésium ( $\text{Mg}^{2+}$ ) diminuent le taux de croissance des minéraux de gypse. Les minéraux gypseux peuvent alors être dispersés dans un sol, en mince strate ou en formation plus massive.

Un des faciès du gypse en strates massives est la pierre d'albâtre. Cependant d'autres morphologies comme le faciès saccharoïde (Figure 16A et C), matriciel (Figure 16B), albastroïde (Figure 16D) ou fer de lance (Figure 16E) peuvent être observées. Ces faciès sont influencés par des paramètres chimiques (composition de la saumure), climatiques (présence de courant d'eau, température jouant sur les paramètres thermodynamiques...), mais également la présence de matière organique issue de la décomposition des végétaux (Rouchy et Blanc-Valleron 2006). De même, les cycles de déshydratation-hydratation avec l'anhydrite peuvent modifier le faciès des minéraux. C'est notamment le cas pour les gypses lutétiens du bassin parisien. Les gypses massifs de type albastroïde sont en effet issus d'une réhydratation secondaire (Toulemont 1986). La nature du gypse primaire n'a cependant pas été investiguée par l'auteur. Il pourrait s'agir d'une forme saccharoïde que l'on peut retrouver à la base de la couche.

## CHAPITRE 1 : ETAT DE L'ART


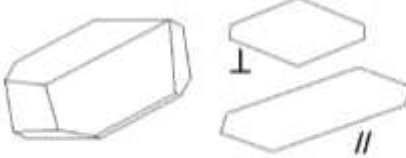


Name	Appearance in thin sections	Crystal forms	
tabular crystals		crystals showing straight crystal faces in all cross sections; lozenge shape in cross sections perpendicular to (010); elongated parallelogram in cross sections parallel to (010)	$\{111\}$ and $\{103\}$ , elongated parallel to the $a$ axis, without widening parallel to the $b$ axis
tabular-prismatic crystals		similar to tabular but with small prism faces, typically with a pseudo-hexagonal shape in cross sections parallel to (101); two crystal faces at termination in cross sections parallel to (010)	similar to tabular but with small faces of the (010) and (120) forms, typically not elongated parallel to the $a$ axis
lenticular-tabular crystals		crystals showing straight crystal faces in cross sections parallel to (010) and curved crystal faces in all other cross sections	neighboring $\{111\}$ faces are replaced by a single curved crystal face parallel to the $a$ axis; the terminations are straight $\{103\}$ faces
lenticular crystals		crystals showing curved crystal faces in all cross sections, with a round shape within the plane of flattening	neighboring $\{111\}$ faces and the adjoining $\{103\}$ face are replaced by a single curved face, resulting in a lens-shaped crystal

Figure 15 Diverses morphologies de cristal de gypse précipité dans un lac asséché. Source (Mees et al., 2012)

Les principaux minéraux annexes rencontrés lors de la précipitation du gypse sont le quartz, les carbonates (calcite, dolomite...) et des argiles de quelques % à 30% de la strate considérée (Jemal (2019)). Une partie de ces dépôts comme les épigénies siliceuses ou la calcite ou dolomite peut également provenir de phénomènes de précipitation/dissolution presque syngénétiques (voir glossaire) c'est-à-dire se formant simultanément au gypse (Toulemont (1982, 1986)). Les teneurs en ces divers minéraux ainsi qu'en éléments traces (fer, zinc...) (Renard (1974)) permettent de déterminer les conditions de formation de la couche de gypse considérée soit en milieu marin ou continental. Des teneurs élevées en strontium (Sr) ou en sodium (Na) indiquent préférentiellement un milieu marin, de même que la présence de quartz. L'argile de type attapulgite indique quant à elle, un milieu continental tropical (Toulemont (1986)). Ces éléments jouent un rôle dans l'accélération ou la limitation des phénomènes de dissolution ou comme points d'initiation de la dissolution (en tant qu'hétérogénéité) (Zaier, 2021).

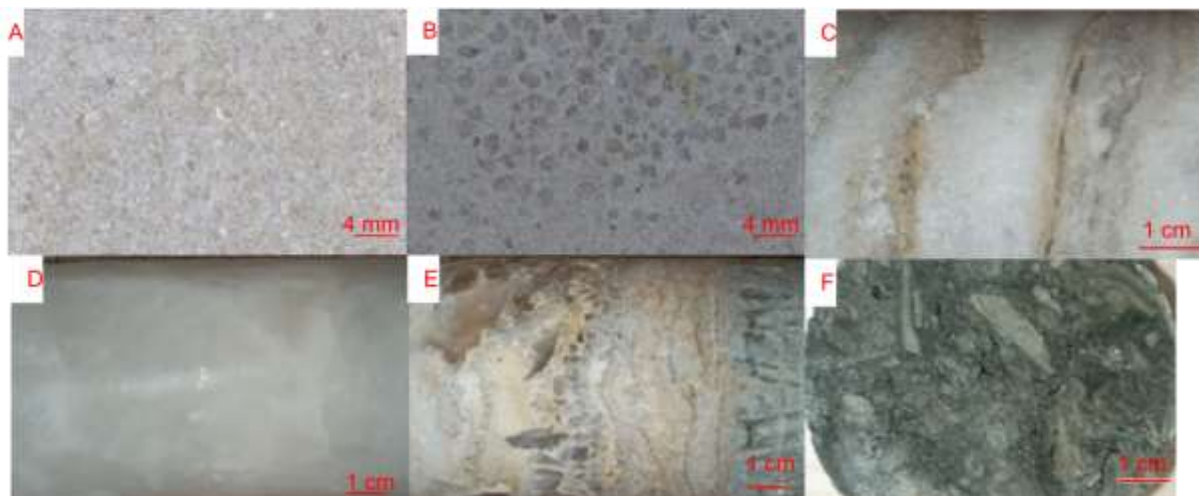


Figure 16 Les principaux faciès de gypse d'Ile de France observé sur les échantillons prélevés et testés dans ce manuscrit de thèse. A : gypse matriciel, B : gypse saccharoïde pur de Paris, C : gypse saccharoïde à interlits, D Gypse alabastroïde, E gypse fer de lance, F : Gypse issu d'une nappe de charriage (toulonnais).

*Synthèse : le gypse est une roche évaporitique composée de sulfates de calcium dihydraté ( $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ) fréquemment rencontrée à la surface terrestre (25 % de la surface selon Zaier, 2021). Le gypse précipite à partir de l'évaporation intense d'une saumure sous la forme de cristaux monocliniques et en « feuillets ». Sa précipitation dans le fluide s'initie à partir d'un noyau où vont venir se fixer les éléments solides par agrégation. De nombreux paramètres comme la durée de précipitation ou la composition de la saumure peuvent affecter la forme prise par ses cristaux et en modifier la structure. Les cristaux de gypse peuvent ensuite se déshydrater en anhydrite et se réhydrater avec les variations de température ou lors de l'enfouissement de la couche gypseuse.*

*Le gypse est une roche tendre cristallisant dans le système monoclinique avec une structure tabulaire. Sensible à des phénomènes de déshydratation-hydratation pouvant impacter sa structure cristalline tout comme la composition de la saumure au moment de sa formation, le gypse est comme toutes les évaporites fortement solubles (plus de 2 g/L) avec une cinétique rapide ( $k_s = 1,3 \cdot 10^{-4} \text{ mmol/m}^2/\text{s}$ ). Les paramètres cinétiques et solubilité sont cependant sensibles aux conditions expérimentales comme la température pouvant favoriser la solubilité.*

### III. **Les aléas liés à la présence de gypse.**

Le gypse est une roche fortement soluble comme l'ensemble des évaporites (plus de 2g/L contre moins de 20 mg/L dans l'eau pure pour la calcite). Cette forte solubilité est couplée à une vitesse de dissolution rapide, favorisant le développement de cavité naturelle ou la dégradation rapide des piliers d'ancienne carrière avec un risque important d'effondrement. Le risque se définit comme le recoupement d'un aléa et des cibles pouvant être affectées (enjeux). Ainsi l'aléa correspond aux phénomènes générant une catastrophe (par exemple les inondations, les effondrements...) causant des dégâts matériels ou humains avec une intensité variable (hauteur de crue par exemple). Les enjeux correspondent à la sensibilité des activités humaines dans la zone étudiée, par exemple des champs seront moins importants qu'une école en termes de priorité de sauvegarde.

Les deux principaux aléas liés à la présence de gypse, à savoir les effondrements et les glissements de terrain, font l'objet de cette partie. L'aléa effondrement de cavité traite à la fois des cavités d'origine naturelle (parakarst) ou anthropiques. Il est ici décrit de manière synthétique ces 2 aléas. Des descriptions plus complètes de la spéléogenèse (voir glossaire) du parakarst gypseux et des fontis associés aux anciennes carrières d'île de France sont données en Annexe I.1.C.

#### **1) Aléa cavité : les effondrements et affaissements liés aux cavités**

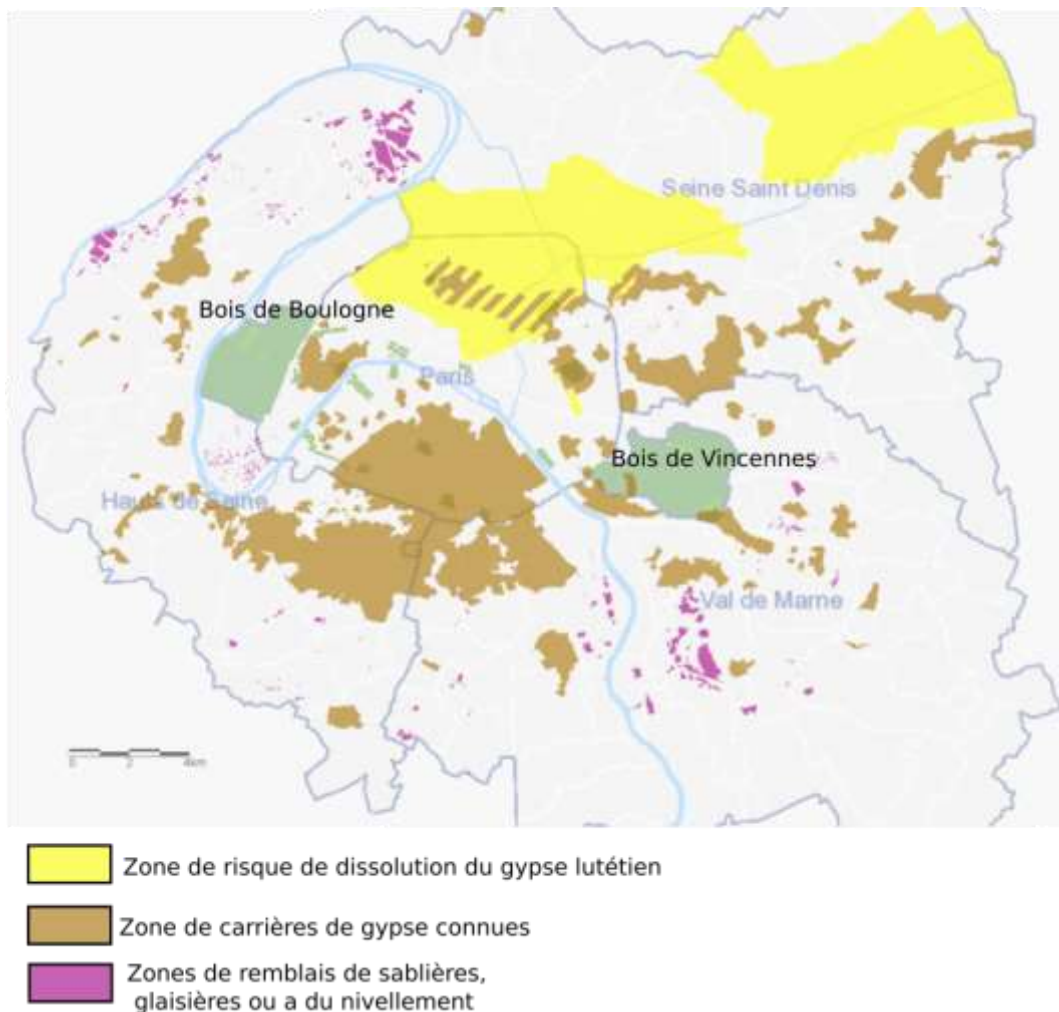
Le principal aléa induit par la présence de gypse est l'affaissement des terrains. Il s'agit d'un tassement du sol produit par la formation de vide souterrain. Ces vides vont créer des zones de faiblesse entraînant un affaissement des couches sus-jacentes voire un effondrement du toit de la cavité. Cet affaissement peut être de quelques millimètres à plusieurs mètres. La cavité formée en profondeur peut évoluer par effondrement successif de son toit. Il s'agit d'une remontée de fontis. Les éléments effondrés vont s'accumuler et combler le fontis, permettant de le stabiliser. La circulation d'eau dans la cavité peut entraîner le lessivage des sédiments. Le lessivage des éléments effondrés peut générer ensuite de nouveaux désordres...

L'origine des cavités dans le gypse peut être issue des activités humaines (exploitations plâtrières...) ou naturelles (parakarstification). Il est ici décrit succinctement la localisation

## CHAPITRE 1 : ETAT DE L'ART

des principales zones d'aléas pour ce phénomène d'affaissement en France. Les processus de formations des fontis au sein d'une carrière ou la spéléogenèse du gypse pour le phénomène karstique sont abordés de manière plus détaillée en annexe I.1.E. La principale zone d'aléa cavité associé au gypse sur le territoire français est la région parisienne (Figure 17). Cette région est historiquement le principal lieu d'exploitation du gypse pour sa transformation en plâtre avec plus de 800 ha recensés dans les années 1980 par l'Inspection Générale des Carrières (IGC) (Du Mouza, 1975; Vachat, 1982). Cette estimation est basée sur les vides connus et peut donc être réellement sous-estimée. Il faut en effet y ajouter les paléokarsts, les zones exploitées non référencées ou non accessibles (précédents effondrements ou rebouchées). Il s'agit également de la zone la mieux documentée en ce qui concerne l'historique des accidents de type effondrement de cavités et de la condition de leur survenue.

Le parakarst du gypse affecte l'ensemble des zones reconnues où le gypse est présent, Klimchouk et al., (1996a) ont ainsi recensé plus de 35 pays soumis à cet aléa. Outre le risque lié aux effondrements, la dissolution du gypse peut entraîner un risque quant à la qualité des aquifères pour leur utilisations (eau potable, irrigation...) (Paukštys et al., 1999). En France, la majorité des incidents liés au karst gypseux sont localisés dans les couches triasiques (Figure 18) et plus particulièrement en Provence. D'après Toulemont (1986), les formations parakarstiques affectant le gypse francilien se sont développées de manière récente au cours du Quaternaire et de l'enfoncement du réseau hydrographique.



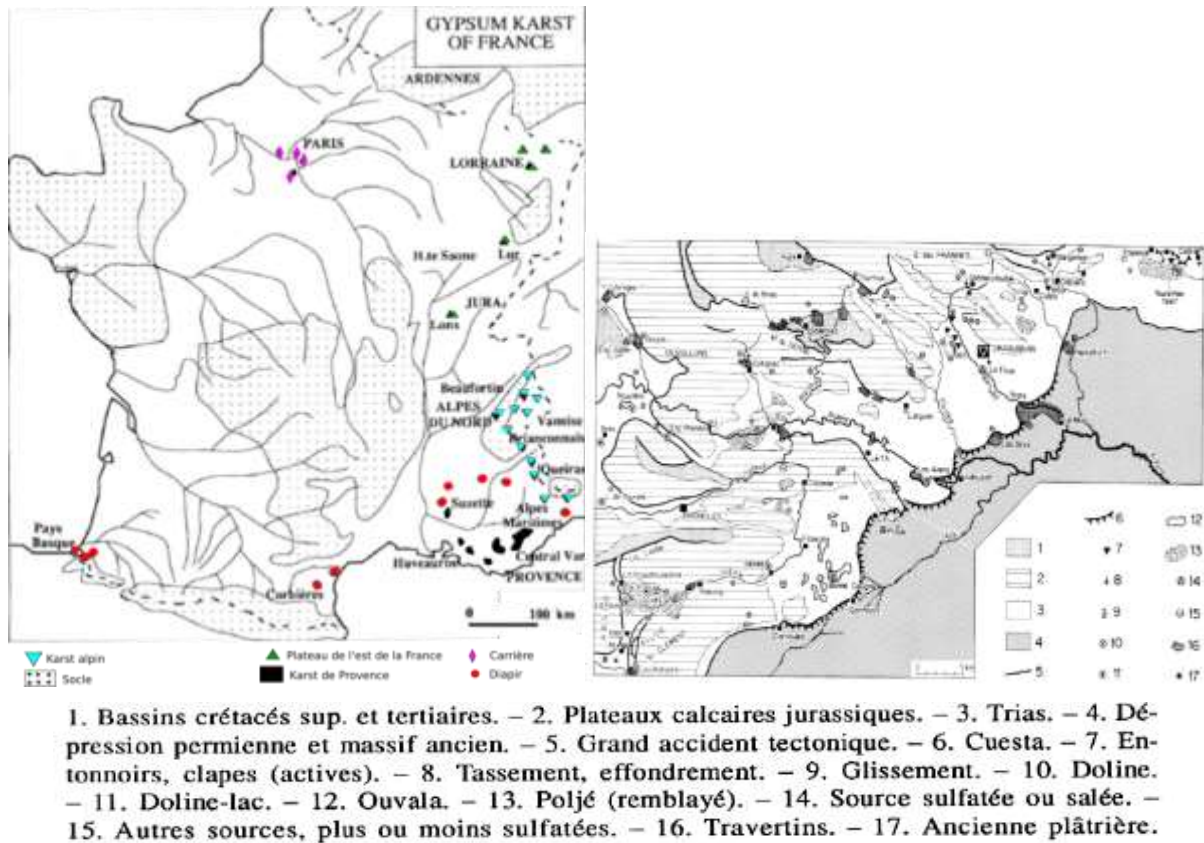


Figure 18 Carte des principaux aléas dans le gypse en France et en Provence. Source (Chardon and Nicod, 1996)

## 2) Aléa mouvement de terrain

### a) Le rôle du gypse dans les glissements de terrain

Le gypse est une roche aux propriétés plastique qui est également sensible à la dissolution à cause de son origine évaporitique. Ce comportement plastique conduit à ce que les formations évaporitiques ont tendance à migrer verticalement et/ou horizontalement lors d'une mise sous contrainte lithosphérique et orogénique. Les évaporites se retrouvent ainsi fréquemment en remplissage de zone de bourrage dans les anticlinaux et les failles. Ce phénomène facilite les glissements dans des zones déjà partiellement décollées (Julian and Nicod, 1990). De nombreux glissements de terrain se retrouvent ainsi dans les zones où les évaporites se retrouvent couvertes par d'autres formations (Bruno and Martillier, 2000; Travelletti et al., 2007; Guerrero and Gutiérrez, 2017).

De plus, les eaux chargées en éléments issus de la dissolution des évaporites ont tendance à diminuer la limite de liquidité d'augmenter la limite de plasticité d'Atterberg. Ainsi le gypse peut avoir un rôle direct dans le déclenchement de glissement mais aussi indirect dans des zones aquifères chargés en produits de dissolution (Julian and Nicod, 1990). Deux des principaux glissements de terrain récents liés à la présence de gypse sur le territoire métropolitain sont présentés succinctement dans les paragraphes qui suivent.

### b) Glissement de Roquebillière (Var) en 1926

Le 24 novembre 1926, s'est produit un glissement de terrain mobilisant 2 000 000 de m<sup>3</sup> de sol. Ce glissement rotationnel (voir glossaire) a provoqué le décès de 19 personnes et rasé une vingtaine de maisons (Figure 19). À la suite de cet évènement, le village fut reconstruit sur l'autre versant de la vallée. Ce glissement a fait suite à une forte période de pluviométrie (7 fois la pluviométrie normale en octobre et novembre selon Bénévent and Maury, 1927). Le

glissement s'est déclenché sur un versant avec une dénivellation de 250 m et recouvert d'une moraine argileuse qui repose sur une alternance de marne et de gypse avec une disposition sub-verticale ( $> 45^\circ$ ) (Julian and Nicod, 1990; Rivet et al., 2012). Le glissement s'est déclenché suite à la saturation de la couche superficielle et a parcouru une distance de 500 m sur une bande de 250 m de large (Bénévent and Maury, 1927).

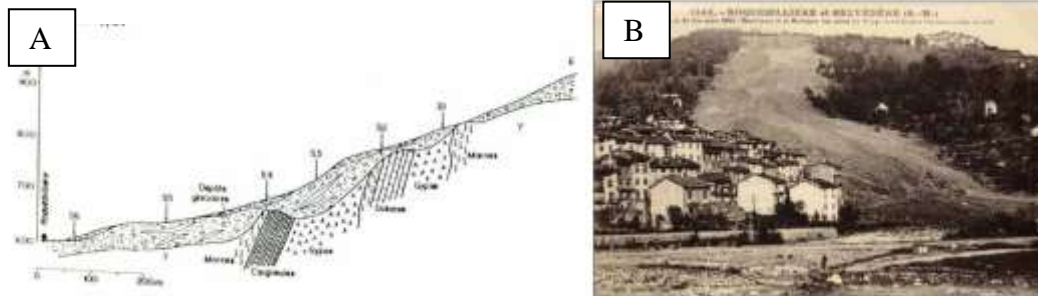


Figure 19 A : Profil du glissement de terrain de Roquebillière. Source (Julian and Nicod, 1990).  
B : Photographie du glissement. Source : (Rivet et al., 2012)

Suite aux pluies persistantes et aux terrains non stabilisés, une réactivation s'est initiée le 30 novembre 1926 jusqu'au 5 décembre de la même année. A ce moment, une vitesse d'avancée de l'ordre de 5 m par jour sur une largeur de 60 à 200 m est relevée. De nombreux événements de moindre importance de type écoulement visqueux ont recoupé ce glissement par la suite. En 1971, un nouveau glissement à évolution lente s'est initié à proximité et est encore actuellement suivi.

### c) Glissement du Lamet (Mont-Cenis)

Le cas du Lamet est un glissement de terrain sur substrat gypseux dans les Alpes (Figure 20). Sa proximité avec un barrage hydroélectrique du Mont-Cenis en fait un glissement particulièrement suivi. Le barrage est haut de 120 m pour une longueur maximale de 1400 m, pour un volume retenu de 316 millions de m<sup>3</sup> environ. La topographie du site correspond à un plateau glaciaire situé entre 1900 m et 2000 m d'altitude. Le point culminant est le Mont-Cenis à 2083 m (Bordet and Deletie, 1979). La géologie se compose principalement de schistes lustrés et de matériaux essentiellement sulfatés datés du Trias (-255 à -200 Ma). Les schistes de même composition pétrographique sont divisés en 4 unités séparées par des masses et des lames du Trias s'intercalant entre ces ensembles. Ces masses ont une épaisseur et une continuité variable. Précisons également que le Trias est ici très variable en termes de lithologie avec des matériaux divers comme des calcaires dolomitiques, des cargneules et du gypse.

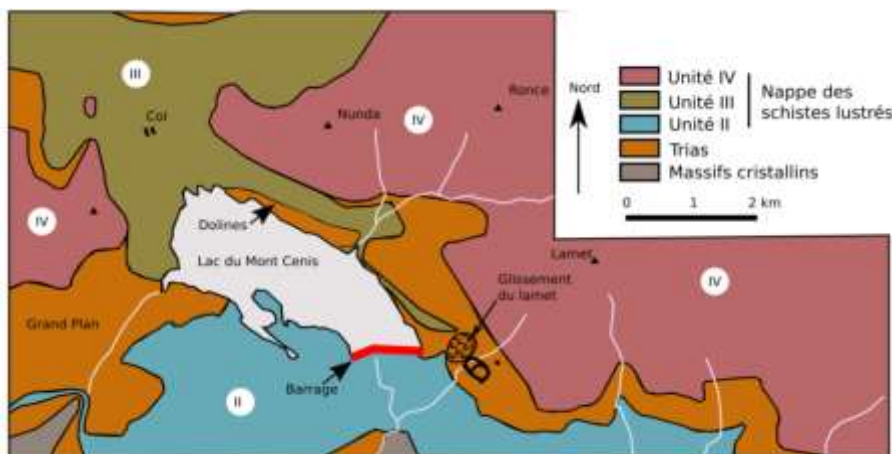


Figure 20 Carte géologique simplifiée du glissement du Lamet. Modifié d'après (Bordet and Deletie, 1979)

## CHAPITRE 1 : ETAT DE L'ART

Le glissement de terrain du Lamet est localisé au Sud-Est du lac, dans une zone avec des pentes de 30°. Sa base est à une altitude de 1900 m et sa cicatrice de rupture vers 2300 m. La longueur du glissement est d'environ 5 km pour une largeur estimée de 700 à 800 m se trouvant entre 2 torrents (Figure 21). La couche référencée comme foudroyée correspond à des colluvions de pentes et des éléments triasiques remaniés et altérés. Le volume de matière déplacée est de l'ordre de 5 millions de mètres cube et se compose de colluvions de pente et de différents matériaux du Trias.

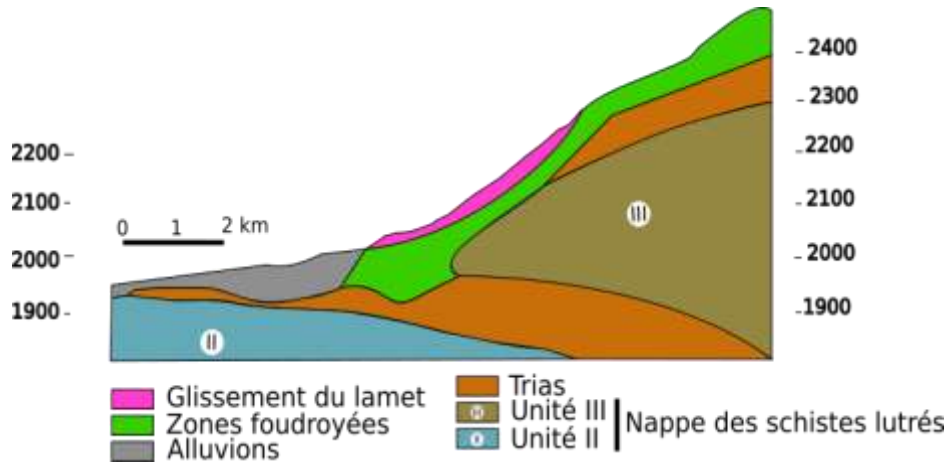
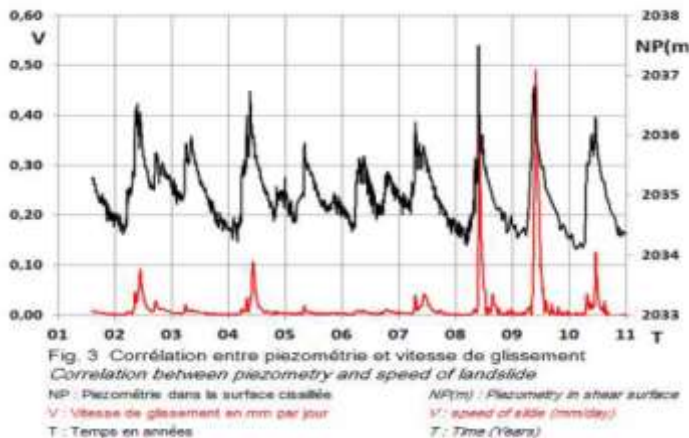


Figure 21 Profil du glissement de terrain du Lamet. D'après (Bordet and Deletie, 1979)

Les premiers relevés de 1967 à 1976 évaluaient des déplacements de 6 cm en horizontal pour 4 cm en vertical. Le tassement global (lié à la dissolution) était estimé à 1 cm/an en pied de glissement (zone où passe une route nationale). Du 1<sup>er</sup> septembre 1976 au 31 août 1977, la pluviométrie relevée était de 1714 mm. Cet apport important en eau a généré des tassements de 6 à 9 cm. Bordet and Deletie (1979) notent le rôle primordial du gypse et de sa dissolution en profondeur ce qui crée de l'instabilité. Ils font une estimation de 100 000 T/an de gypse dissous et mettent également en garde sur cette valeur obtenue malgré de nombreuses incertitudes sur les paramètres comme les apports ou les relargages d'eau au niveau du site et la variabilité de la concentration en sulfate dans l'eau.

Le glissement du Lamet est depuis ces années surveillé par un important dispositif de capteurs qui a permis de mieux comprendre son évolution (Figure 22). La vitesse de déplacement apparaît comme directement reliée au niveau piézométrique d'une nappe perchée présente dans le glissement (Fabre et al., 2015).



NP : niveau piézométrique  
V : vitesse de glissement (mm/an)  
T : temps en années

Figure 22 Corrélation entre piézométrie et vitesse de glissement. Source (Fabre et al., 2015) avec NP : niveau piézométrique, V : vitesse de glissement (mm/an), T : temps en années



*Synthèse : Roche fortement soluble et au comportement plastique, le gypse peut se déformer sous contrainte et favoriser la déstabilisation de versant avec un risque de glissement de terrain. Ces glissements de terrain restent relativement méconnus et peu nombreux, mais ils peuvent entraîner des drames comme à Roquebillière. L'autre aléa touchant les zones gypsifères est la remontée de fontis suivi d'un effondrement atteignant la surface. Cet aléa peut intervenir rapidement suite à la mise en contact des roches gypseuses avec une eau sous saturée. Les nombreuses carrières de gypse présentent en France et principalement en région parisienne constituent ainsi un aléa important qui demande une meilleure compréhension du comportement du gypse.*

*Ces 2 facteurs (solubilité et cinétique) sont à l'origine de la formation rapide de parakarst quand les conditions géologiques le permettent. Leur préservation et leur développement sont souvent complexes du fait des faibles propriétés mécaniques du gypse. Il en va de même pour les carrières où les piliers sont peu résistants en cas d'arrivée d'eau. Ainsi le gypse présente un risque important vis-à-vis des effondrements mais également des glissements de terrain où son comportement plastique peut avoir un rôle activateur.*

### **B. La dissolution du gypse**

Dans cette partie, un état des connaissances sur la dissolution du gypse est dressé. Dans un premier temps, la solubilité du gypse et sa sensibilité aux paramètres physico-chimiques (pH, température, force ionique) sont décrites. Cette roche a fait l'objet de nombreuses études notamment avec des essais sur poudre pour caractériser son processus de dissolution à double cinétique. L'origine de cette double cinétique de dissolution ainsi que les constantes de dissolution associées sont présentées.

La variabilité des cinétiques en fonction des facteurs physico-chimiques à savoir la température et la vitesse d'agitation sera utile dans l'élaboration du programme expérimental détaillé en chapitre 2 et pour le choix des paramètres chimiques nécessaires au modèle développé dans cette thèse. Les effets de la nature des ions en solution sur la solubilité du gypse sont également abordés. En effet, la réalité des aquifères est plus complexe et demande à prendre en compte la géochimie du système (équilibres complexes des réactions entre plusieurs espèces). La mise en place de chemins préférentiels d'écoulement de l'eau via le phénomène de « whormhole » et les facteurs qui permettent son déclenchement sont décrits.

#### **I. Solubilité du gypse**

Le gypse, comme l'ensemble des roches évaporitiques, possède une solubilité importante au regard des autres familles minérales (de l'ordre du g/L). À titre de comparaison, la solubilité du calcaire est de 14 mg/L dans de l'eau pure à 25°C contre 2,5g/L pour le gypse (Tableau 1). La dissolution du calcaire est généralement contrôlée par le pH de l'eau. Une eau acide sera plus agressive et favorisera la dissolution de ce dernier (Brunet, 2017). Cet effet n'entre pas en jeu dans le cas du gypse où les éléments se dissolvent par solvation. Il s'agit du phénomène chimique par lequel les éléments en phase solide passent en solution sous forme ionique. Dans le cas du gypse, la température à laquelle la réaction se produit, a un rôle important. La dissolution du gypse intervient tant que l'équilibre chimique n'est pas atteint, c'est-à-dire que le produit des activités des ions  $\text{Ca}^{2+}$  et  $\text{SO}_4^{2-}$  est inférieur au coefficient de solubilité.

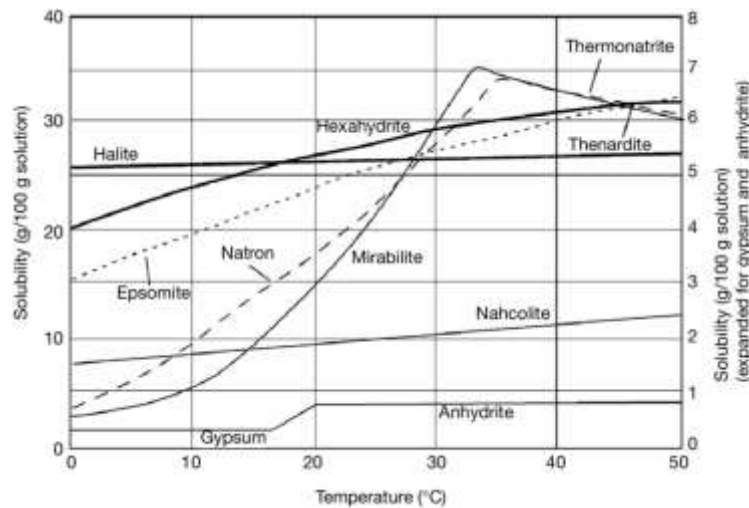
## CHAPITRE 1 : ETAT DE L'ART

Par contre, la réaction est entretenue en cas de renouvellement du fluide en contact avec la surface de gypse (par exemple avec l'écoulement d'une nappe d'eau sous saturée au travers d'un massif gypseux) et ce jusqu'à dissolution complète du matériau.

**Tableau 1 Exemple de la solubilité de quelques minéraux.**

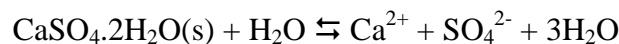
Minéral	Solubilité (g/L) (t°)	Références
Gypse	2,5 à 25°C	(Zaier, 2021)
Calcite	0,014 à 25°C (eau pure)	(Ek, 1973)
Dolomie	0,0055 à 25°C	(Zaier, 2021)
Halite	360 à 20°C	(Golfier, 2001)
Célestine	0,0114 à 20 °C	(Poonoosamy et al., 2019)

Le gypse est la roche évaporitique avec la plus faible solubilité (Figure 23), de l'ordre de 2 à 2,7 g.L<sup>-1</sup> (Tableau 2) (Kuechler et al., 2003; Lebedev, 1997; Zaier, 2021).



**Figure 23 : Solubilité des sels en fonction de la température.(Deocampo and Jones, 2014)**

La réaction de dissolution s'écrit (Zaier, 2021), (Lebedev and Lekhov, 1989) :



Pour une même température de réaction, la littérature présente des valeurs de solubilité variables. Cette variabilité est liée à la précision des capteurs (sonde conductimétrie, pH métrique..) et au manipulateur qui peut influencer la valeur obtenue (Tableau 2). L'équilibre de la réaction est quant à lui contrôlé par l'énergie libre de Gibbs (G), minimale pour une pression et une température donnée (Ouraga and Laouafa, 2020; Zaier, 2021; Lebedev, 2017). Le potentiel chimique ( $\mu$ ) est obtenu à partir de la dérivée de cette énergie libre par rapport à la masse de matière (nombre de mole n) (éq1.B.1).

$$\mu = \frac{\partial G}{\partial n} \quad (\text{éq1.B.1})$$

Le potentiel chimique de chaque espèce permet de déterminer le point d'équilibre de la réaction. Pour cela le minimum de G est obtenu lorsque la relation suivante est respectée (éq1.B.2).

$$d\mu_D + c\mu_C - a\mu_A - b\mu_B = 0 \quad (\text{éq1.B.2})$$

## CHAPITRE 1 : ETAT DE L'ART

d,c,b et a étant les moles produites et consommées dans la réaction. L'énergie libre de Gibbs est sensible à la pression et à la température, il est possible de définir le potentiel chimique d'une espèce en prenant en compte ses paramètres suivants l'équation (éq1.B.3).

$$\mu = \mu^0 + RT \ln X \quad (\text{éq1.B.3})$$

Avec  $\mu^0$  le potentiel chimique de l'espèce sous sa forme pure à la température et à la pression d'intérêt et X la fraction molaire de l'espèce en solution.

**Tableau 2 Variabilité de la solubilité du gypse à 25°C dans la littérature.**

Références	Solubilité (mmol.L <sup>-1</sup> )	Concentration (g.L <sup>-1</sup> )
Nicod, 1976		2,0
Lebedev et Lekhov, 1989	14,6	2.5
Nakayama et Rasnick, 1967	14,7	2.5
Klimchouk, 1996	14,7	2.5
Liu et Nancollas, 1971	14,8	2.5
Lebedev, 2015	15,1	2.6
Marshall et Slusher, 1966	15,1	2.6
Sun, 2015	15,18	2.6
Christoffersen et Christoffersen, 1976	15,2	2.6
Jeschke, 2001	15,3	2.6
Chardon, 1996		2,6
Zaier, 2021	15 à 15,6	2,6 à 2,7
Azimi et Papangelakis, 2011	15,4	2.7
Raines et Dewers, 1997	15,8	2.7
Blocket Waters, 1968	16,1	2.8
Fabre and Dayre, 1982		2,98

### 1) Notion de force et d'activité ionique

La force ionique (I) est le principal facteur influençant l'activité ionique en solution à partir de leurs concentrations  $c_i$  et de leurs charges ioniques  $z_i$  (éq1.B.4). Elle est dépendante de ces charges (positives ou négatives) et de la quantité des ions en solutions, sa valeur augmentant avec l'augmentation de la quantité d'éléments en solution (la concentration) (Zaier, 2021; Brunet, 2017; Reiss et al., 2021; Dai et al., 2017a). Elle se calcule comme suit :

$$I = \frac{1}{2} \sum_i c_i z_i^2 \quad (\text{éq1.B.4})$$

Avec  $c_i$  : concentration de l'espèce i (mol.L<sup>-1</sup>), I : force ionique (mol.L<sup>-1</sup>), z : charge de l'espèce i.

Dans un cadre idéal, la quantité de charge en solution est censée être en équilibre et la solution neutre. Ce qui n'est que rarement le cas, le déséquilibre entraîne une activité des ions inférieurs à ce que cela devrait être. L'activité des ions ou activité ionique ( $a_i$ ) est ainsi fortement dépendante de la force ionique. Cette activité est la concentration de soluté pouvant effectivement être mobilisée dans les réactions. Il peut être déterminé à l'aide d'un coefficient d'activité ionique ( $\gamma_i$ ). Si ce coefficient est égal à 1 alors l'ensemble des ions est mobilisable.

$$\gamma_i = \frac{a_i}{c_i} \quad (\text{éq1.B.5})$$

Où  $a_i$  : activité ionique de l'espèce  $i$  ( $\text{mol.L}^{-1}$ ),  $c_i$  : concentration de l'espèce  $i$  ( $\text{mol.L}^{-1}$ ).

Une relation est établie par la loi de Debye-Hückel permettant de déterminer le coefficient d'activité ionique en fonction de la force ionique. Cette loi est exprimée de 2 façons selon les concentrations considérées. Dans le cas d'une concentration faible, la loi est dite loi de Debye-Hückel limitée (éq.I.B6) et pour de fortes concentrations, loi de Debye-Hückel étendue (éq1.B.7).

$$\log \gamma_i = - B z_i^2 \sqrt{I} \quad \text{eq (limitée)} \quad (\text{éq1.B.6})$$

$$\log \gamma_i = - B z_i^2 \left( \frac{\sqrt{I}}{1+0.33a\sqrt{I}} \right) \quad \text{eq (étendue)} \quad (\text{éq1.B.7})$$

Avec  $a$  : paramètre homogène à une longueur et  $B$  : constante expérimentale valant 0,509 à 25°C.

D'autres théories que celle de Debye-Hückel peuvent être considérées comme Pitzer ou le modèle SIT mais ne seront pas développées ici, le modèle de Debye-Hückel apparaissant plus proche des conditions naturelles de la dissolution du gypse (Zaier, 2021).

L'augmentation de la force ionique (souvent via l'ajout de NaCl en solution) entraîne une augmentation de la solubilité du gypse ( $K_s$ ) jusque 300%. Ce qui est le cas pour le gypse avec une force ionique équivalente à 3 g/L de NaCl (Figure 24). Une relation (éq.1.B.8) a été proposée par Katz et al. (1981) à partir de résultats expérimentaux :

$$10^3 K_s = 5,498 - 0,3769I \quad (\text{éq1.B.8})$$

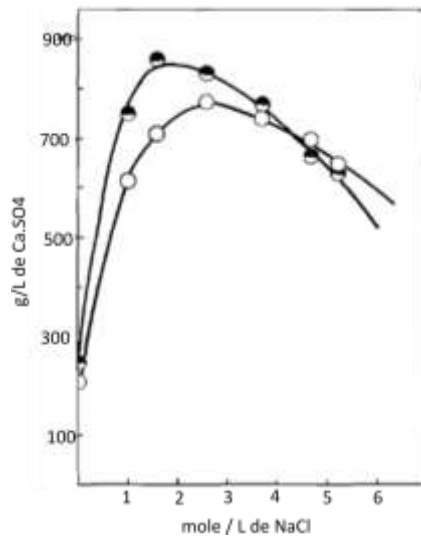


Figure 24 Effet de la force ionique sur la solubilité du gypse. D'après Bock, (1961)

## 2) Effet de la température sur la solubilité du gypse

La température est un paramètre physique qui agit sur le niveau d'agitation des molécules. Dans le cas des réactions chimiques, ce paramètre doit être contrôlé afin d'assurer la reproductibilité et la répétabilité d'un essai. La température peut jouer un rôle d'inhibiteur ou d'activateur d'une réaction. Les molécules étant plus mobiles à des températures plus élevées (Dai et al., 2017b; Jin et al., 2020; Bouissonnié et al., 2018; Nordstrom and Campbell, 2014), les réactions chimiques ont tendance à se faire de manière plus rapide, selon le principe de la loi d'Arrhenius (éq1.B.9).

$$k = \kappa * e^{\frac{-E_a}{RT}} \quad (\text{éq1.B.9})$$

## CHAPITRE 1 : ETAT DE L'ART

Avec  $E_a$  : énergie d'activation,  $R$  : constante des gaz parfaits,  $T$  : température (Kelvin),  $\kappa$  : facteur pré-exponentiel,  $k$  : constante de dissolution.

La température peut également avoir un effet sur les concentrations de saturation et impacter la viscosité des fluides (Guével et al., 2020; Oukhlef et al., 2023; Zaier, 2021). Plus ce dernier est visqueux, plus sa vitesse d'écoulement est faible, et donc sa capacité à pénétrer les vides de faibles dimensions est réduite.

Pour exemple, concernant la dissolution de la calcite, des températures froides favorisent la dissolution du calcaire. Mais cette baisse de température entraîne également une dissociation plus importante des molécules d'eau ( $H_2O$ ) en ion hydrogène ( $H^+$ ) et hydroxyle ( $HO^-$ ). Les ions hydroxyles sont primordiaux pour la dissolution du calcaire et leur effet plus important que celui de la baisse de cinétique de dissolution (Brunet, 2017; Ek, 1973; Morse and Arvidson, 2002).

Dans le cas du gypse, la température favorise la dissociation des ions  $Ca^{2+}$  et  $SO_4^{2-}$ . Ainsi le gypse voit sa solubilité augmenter pour des eaux entre 0 et 40°C (273 à 313 Kelvin) (Figure25) (Blount and Dickson, 1973; Marshall and Slusher, 1966; Shen et al., 2020b; Zaier et al., 2021).

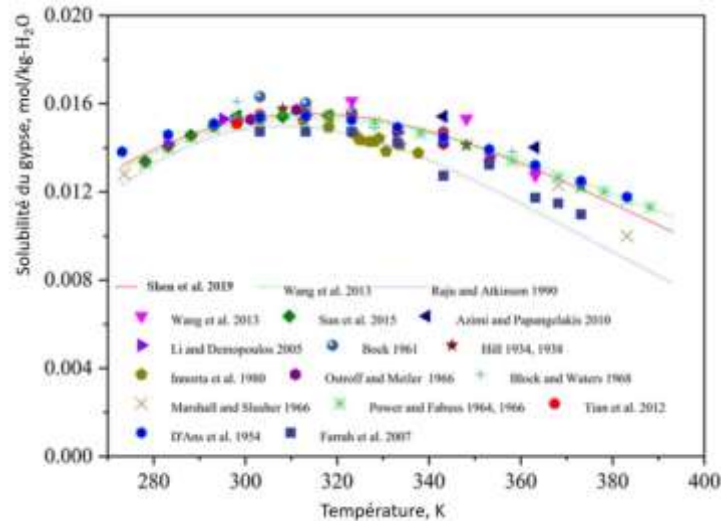


Figure25 : Solubilité du gypse en fonction de la température. (Shen et al., 2020b)

Cette solubilité va ensuite diminuer (Tableau 3). Cette diminution est causée par la déshydratation progressive du gypse ( $CaSO_4 \cdot 2H_2O$ ) en anhydrite ( $CaSO_4$ ). La forme anhydrite possède en effet une solubilité inférieure au gypse ce qui inverse la courbe de tendance de la solubilité du gypse en fonction de la température et explique la diminution de solubilité à des températures supérieures à 42°C. Le Tableau 3 met également en évidence la forte solubilité des évaporites par rapport à d'autres minéraux.

Tableau 3 : Variation de la saturation du gypse en fonction de la température (g/L). D'après Hong et al., 2018

Minéral	Formule chimique	0°C	10°C	20°C	30°C	40°C	50°C	60°C	70°C	80°C	90°C	100°C
Gypse	$CaSO_4 \cdot 2H_2O$	2,23	2,44	2,55	2,64	2,65	/	2,44	/	2,34	/	2,05
Anhydrite	$CaSO_4$	1,76	1,93	/	2,09	2,10	2,04	2,00	/	/	/	1,60
Calcite	$CaCO_3$	0,10	0,11	0,12	0,13	0,14	0,15	0,16	0,1645	0,17	0,18	0,18
Dolomite	$CaMg(CO_3)_2$	0,16	0,15	0,14	0,14	0,15	0,16	0,17	0,18	0,20	0,21	0,24

### 3) Effet de la pression sur la solubilité du gypse

Dans le cas des gaz, l'augmentation de pression entraîne une augmentation de la solubilité d'un gaz dans un fluide qui est régie par le principe de Le Chatelier soit « tout système en équilibre et soumis à une perturbation, se modifie pour y répondre et retrouver un état d'équilibre ». Ce principe bien que normalement appliqué aux gaz est également applicable à la solubilité des roches (Blount and Dickson, 1973; Millero and Berner, 1972; Dai et al., 2017b). L'augmentation de pression est souvent étudiée en corrélation avec une augmentation de température pour correspondre aux conditions d'enfouissement des roches (Figure 26). Avec l'augmentation de température et de pression résultant de l'enfouissement des couches de gypse ; Sous cette forme, sa solubilité est 10 fois plus importante sous l'effet de la pression (Klimchouk, 1996d; Millero and Berner, 1972).

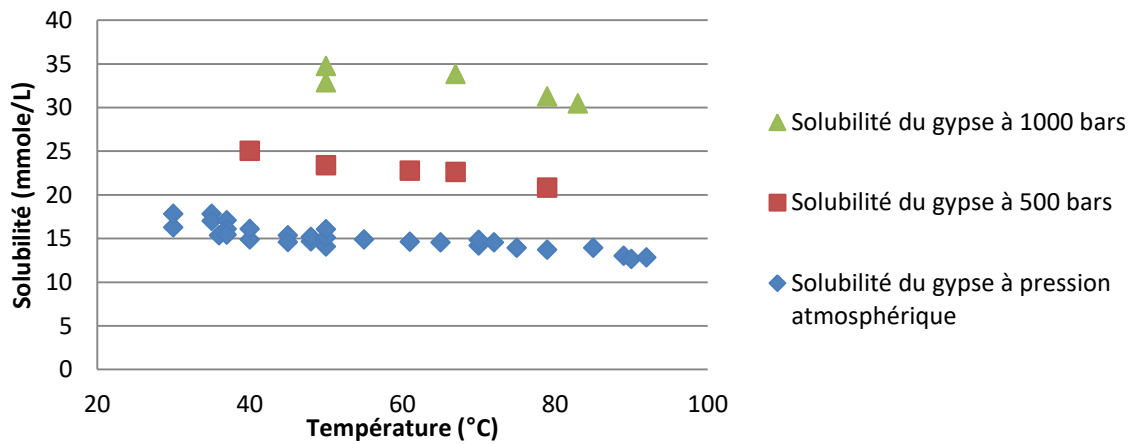


Figure 26 : Variation de la solubilité du gypse en fonction de la pression. D'après (Blount and Dickson, 1973)

Dans le cas du gypse, pour de l'eau pure à 0°C, sa solubilité passe de 13,6 à 69,66 mmol/L (Figure 27) pour une augmentation de pression de 1 à 1400 bars (Dai et al., 2017b).

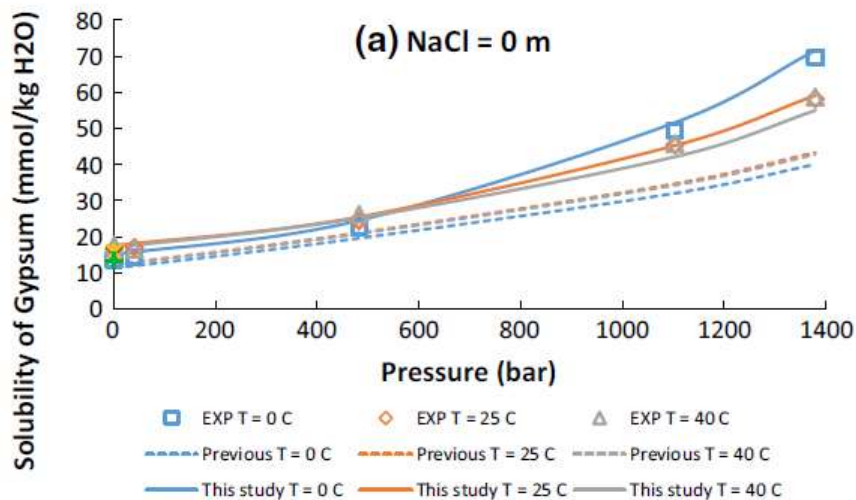


Figure 27 : Evolution de la solubilité du gypse dans l'eau pure en fonction de la pression à 0, 25 et 40°C. « EXP » : valeurs expérimentales. « This study » : courbe de tendance en découlant et « Previous » la courbe théorique du modèle de Kassa, (1998). Source (Dai et al., 2017b)

#### 4) Effet du pH sur la solubilité du gypse

Le pH est pour certaines réactions un facteur d'inhibition ou d'accélération de la dissolution. C'est notamment le cas pour les carbonates. Les pH acides avec une plus grande concentration en ions  $H^+$  et  $HCO_3^-$  favorisent la dissociation de la calcite. Quant au gypse, l'impact du pH sur sa solubilité est jugée négligeable dans de l'eau pure (Tableau 4) (Shukla et al., 2008; Miraghapour et al., 2022; Ezuber et al., 2023).

Tableau 4 : solubilité du gypse en fonction du pH dans de l'eau pure. (Shukla et al., 2008)

pH	2,5	5	6	7	8,5
Solubilité (mol/L)	15,7	15,6	14,9	14,8	15,5

Ce faible impact du pH est lié au fait que la dissolution du gypse se produit par dissociation. La mise en contact avec l'eau sous saturée entraîne une rupture des liaisons faibles entre les éléments chimiques constitutifs du gypse, et une réaction complète sans éléments résiduels. Il s'agit d'une réaction dite « congruente » où l'ensemble des produits de la réaction respecte la stoechiométrie du solide dont ils sont issus (Jambon and Thomas, 2009).

La réaction de dissociation n'incluant pas l'intervention d'ions  $H^+$  ou  $OH^-$ , le pH n'influence pas directement la solubilité du gypse, bien que la force ionique en soit affectée. Toutefois, Shukla et al. (2008) notent une légère modification de la solubilité avec le pH selon la force ionique comme par exemple en présence de NaCl à 2.5 à 5 mol.L<sup>-1</sup> (Figure 28). Cet effet reste cependant minime entre pH 2,5 et 8,5 avec une variation de la solubilité de moins de 0,005 mol.L<sup>-1</sup>.

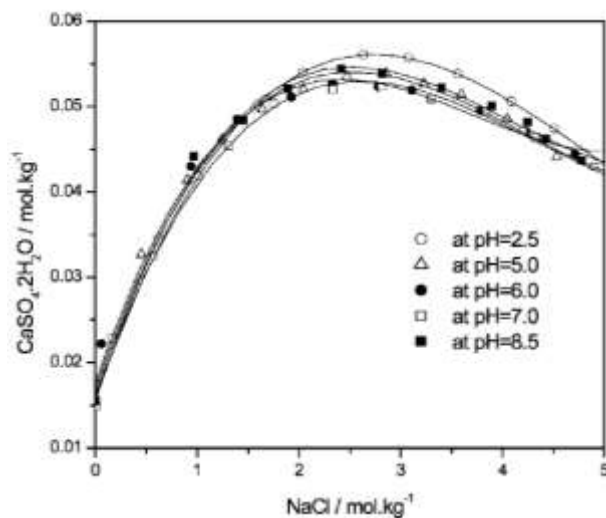


Figure 28 : Solubilité du gypse à 35°C avec des concentrations de NaCl et à pH variable.(Shukla et al., 2008)

#### 5) Effet de la granulométrie sur la cinétique de dissolution du gypse

D'après Lebedev and Kosorukov (2017), la taille des grains utilisés dans des essais de dissolution sur poudre pour déterminer la solubilité du gypse semble avoir un rôle non négligeable (Figure 29). Plus la taille des éléments est réduite, plus la solubilité augmente. Cet effet ne prévaut que pour les grains inférieurs à 1  $\mu m$ . Pour des éléments supérieurs, la solubilité apparaît comme relativement constante. Les auteurs avancent comme explication, le phénomène du murissement d'Oswald. Il s'agit d'un phénomène physique où les petits cristaux se dissolvent davantage malgré la saturation suite à des effets de tension superficielle.

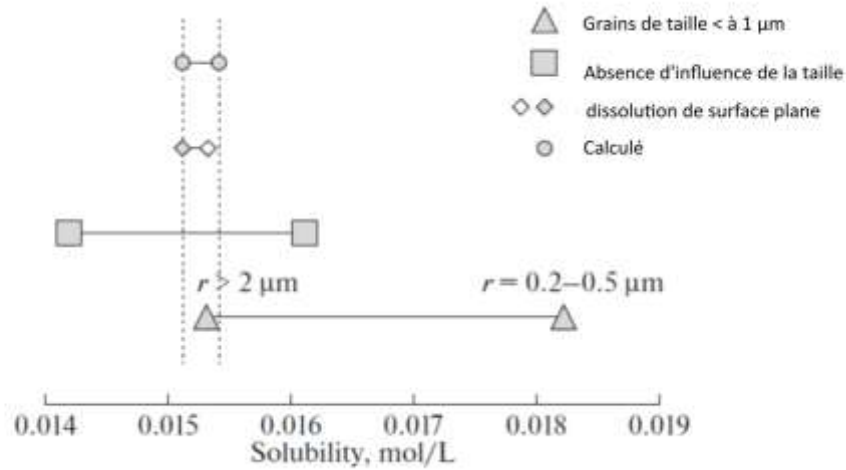


Figure 29 Effet de la granulométrie sur la solubilité du gypse à 25°C. D'après (Lebedev and Kosorukov, 2017)

## 6) Effet de compétition de quelques minéraux sur la solubilité du gypse

### a) Calcite

La présence d'ions calcium dans la solution au moment de l'initiation de la dissolution va diminuer la solubilité du gypse par un effet d'ions communs (Figure 30). La quantité présente en solution rapprochant déjà le fluide de l'équilibre (Zaier, 2021; Li and Duan, 2011).

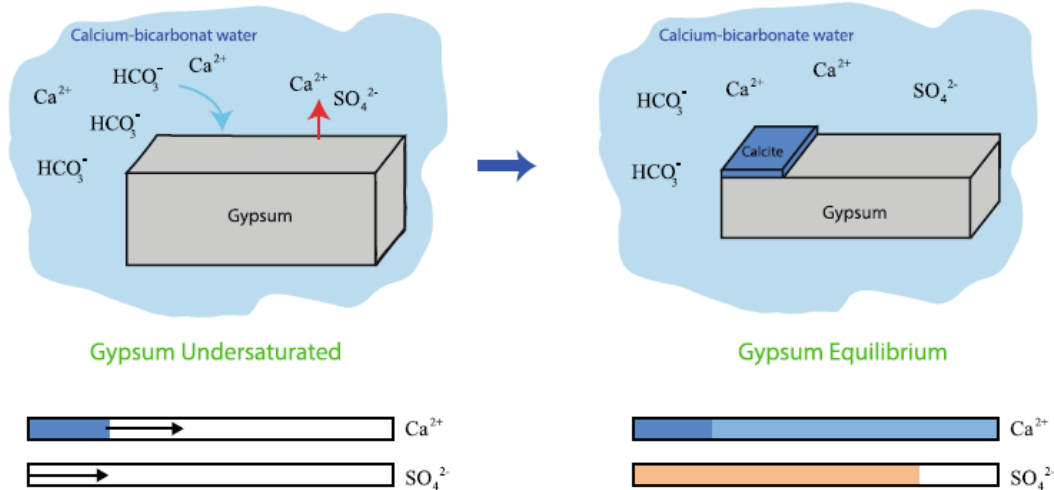


Figure 30 Effet de la présence de calcium en solution sur la dissolution du gypse. (Zaier et al., 2022)

### b) Halite

La molécule la plus utilisée pour établir et compenser les effets de force ionique (I) en solution est le NaCl. Son apport dans la solution a tendance à favoriser la solubilité du gypse (Figure 31). Cette augmentation de solubilité avec l'ajout de NaCl est valable de 0 à 3 mol.L<sup>-1</sup>. Des concentrations plus fortes auront tendance à réduire la solubilité du gypse. Au-delà de son effet, la comparaison avec le NaCl peut avoir son importance puisque présent en quantité importante dans l'eau de mer. Ainsi, la précipitation du gypse nécessite de prendre en compte cet ion (Reiss et al., 2021, 2019; Rendel et al., 2016, 2018).



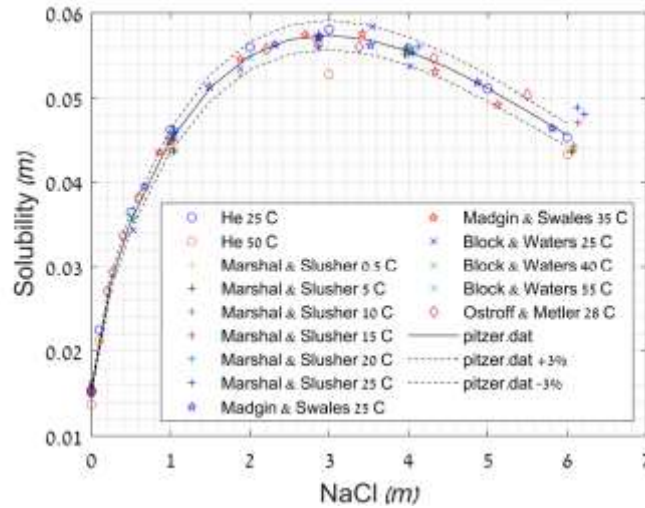


Figure 31 Évolution de la solubilité du gypse pour différentes concentrations en NaCl et températures. Source (Reiss et al., 2021)

**c) Dolomie**

Le magnésium est un ion fréquemment rencontré dans les nappes souterraines suite à la dissolution de minéraux comme la dolomie ou la magnésite (Águila et al., 2022). La présence de gypse avec de la dolomie va favoriser la dissolution de cette dernière.

L'utilisation du magnésium comme élément de force ionique va favoriser la solubilité du gypse comme le ferait NaCl. Son effet est d'ailleurs supérieur (Figure 32) avec 1/3 de solubilité en plus. Son effet est positif pour des concentrations jusque 3 mol/L avant de s'atténuer ;

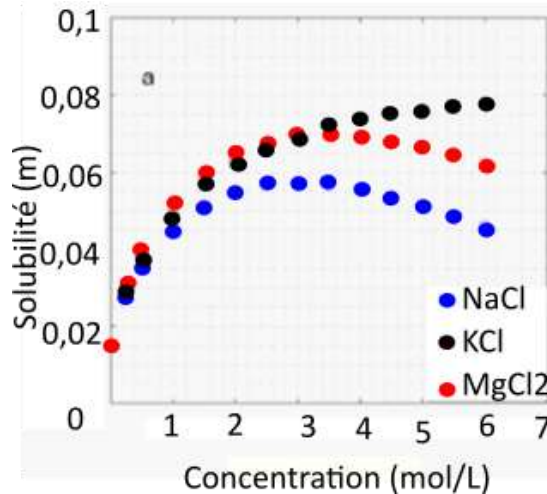


Figure 32 Effet de la présence de magnésium en solution sur la solubilité du gypse. D'après (Reiss et al., 2021)

La solubilité du gypse est supérieure à 2 g.L<sup>-1</sup>. Cette solubilité est donc importante et sensible aux conditions environnantes de réaction, notamment la température qui favorise la solubilité jusque 42°C avant de devenir inhibant avec la transformation par déshydratation du gypse sous forme d'anhydrite moins soluble. La granulométrie semble également avoir un effet sur la solubilité mais pour des éléments de taille micrométrique. Cependant lorsque l'on se rapproche de la saturation après dissolution et réduction de la taille des grains, on peut se retrouver avec des grains très inférieurs à 1 µm. La force ionique, avec l'ajout de NaCl notamment comme rencontré en milieu marin, favorise la solubilité du gypse jusqu'à 3 mol.L<sup>-1</sup>.

## II. Régime de dissolution du gypse

Le taux de dissolution est la quantité de matière dissoute par unité de surface et de temps, elle est exprimée en  $\text{mol.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ . La dissolution se produit jusqu'à ce que la saturation soit atteinte. La saturation et donc l'arrêt de la dissolution peut être empêchée par un renouvellement de l'eau suffisamment rapide. En d'autres termes, la saturation n'est pas atteinte si l'écoulement dans le milieu poreux soluble est plus rapide que la vitesse de dissolution. La cinétique de dissolution exprime ainsi la vitesse de libération des produits de réaction dans la solution et leur transport pour éviter la saturation.

La cinétique de dissolution du gypse suit une double cinétique (Figure 33). Elle se compose en effet d'une première cinétique de courte durée, valable de l'initiation de la dissolution jusqu'à environ 90 % de la concentration maximale (Barton and Wilde, 1971; Liu and Nancollas, 1971; James and Lupton, 1978; Lebedev and Lekhov, 1989; Jeschke et al., 2001a; Zaier et al., 2021). Cette première cinétique s'applique pendant quelques dizaines de minutes lorsque la suspension contenant la poudre de gypse à dissoudre est mise en agitation assez fortement. Un ralentissement important de la cinétique de dissolution se produit ensuite et généralement plusieurs heures sont nécessaires pour atteindre la saturation totale ( $C_{\text{sat}}$ ) de la solution. Cette double cinétique est appelée « régime mixte ».

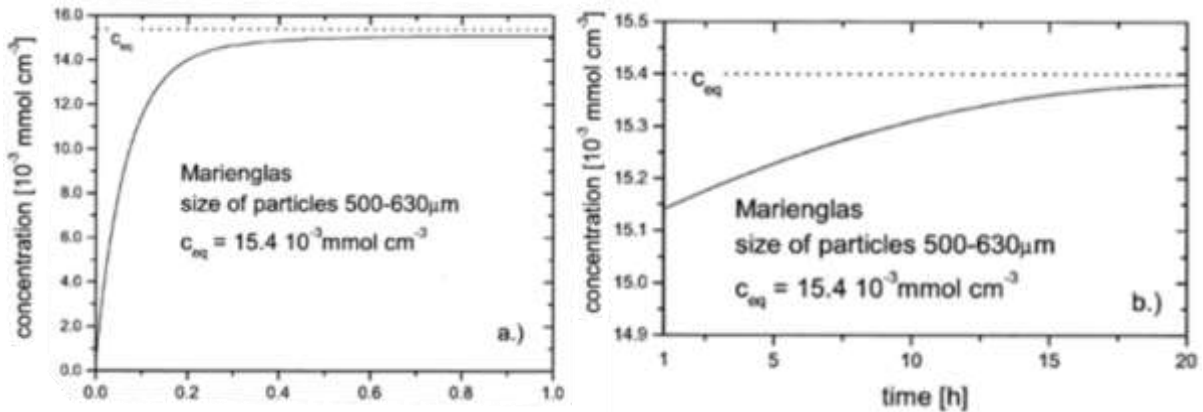


Figure 33 : Dissolution de gypse par essai batch. Source (Jeschke et al., 2001a)

Plusieurs pistes d'explication sont avancées pour cette transition entre deux régimes de cinétique de dissolution, comme le nombre de noyaux de germination (Zaier et al., 2021). Dans cette hypothèse, si les nucleus (voir Partie A) sont présents en quantité à la surface d'un cristal de gypse, alors ils peuvent générer des points d'initiation de dissolution supplémentaire. Une autre hypothèse est celle du contrôle par la couche limite (DBL) (Figure 34). La couche limite autour d'une particule au contact d'un fluide est une théorie qui distingue :

- une phase « externe » correspondant au fluide qui n'interagit pas directement avec le solide et dont l'écoulement est considéré laminaire.
- une phase « interne » qui correspond à une zone à proximité de la phase solide considérée où les molécules d'eau vont interagir avec les minéraux se dissolvant.

La délimitation entre ces deux zones est symbolisée par une couche limite marquant la démarcation entre le fluide « interne » interagissant avec le solide et le fluide « externe ». Les conditions d'écoulement dans la couche interne sont différentes de celles des régimes classiques, car non laminaire. L'épaisseur de cette couche limite est variable en fonction de la

vitesse et de la température. Plus la vitesse d'écoulement/d'agitation est faible, plus l'épaisseur de la couche interne est importante.

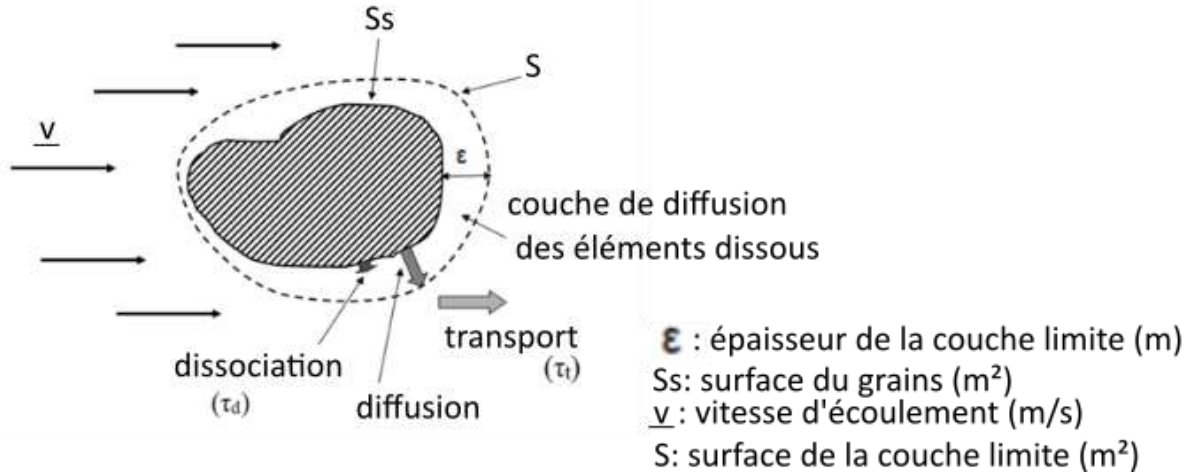


Figure 34 : Schéma du processus de dissolution avec la couche limite.(Colombiani, 2008)

Le taux de dissolution pourra donc être régulé par 2 mécanismes en fonction de celui qui sera limitant à l'instant considéré.

- Le taux de dissociation  $\tau_d$  correspond à la vitesse de dissolution dans la couche limite.
- Le taux de transport  $\tau_t$  correspond à la diffusion des ions dissous de la couche limite vers la masse d'eau s'écoulant à l'interface.

Si la diffusion ( $\tau_t$ ) est plus lente que la dissociation ( $\tau_d$ ), la dissolution sera contrôlée par la dissociation, le transport pouvant diffuser l'ensemble du soluté au fur et à mesure de sa production.

Dans le cas où la dissociation ( $\tau_d$ ) est plus lente que la diffusion ( $\tau_t$ ), la dissolution sera contrôlée par le transport. La dissociation va saturer la couche limite, la réaction n'évoluant plus qu'à la vitesse de libération du soluté dans le fluide « libre ». La dissolution sera donc contrôlée par le phénomène le plus lent de sorte que (équ.1.B10) soit vérifiée.

$$\tau_t = \tau_d = \tau \quad (\text{équ.1.B10})$$

Les équations de chacun des régimes sont exprimées selon les équations (équ.1.B11) et (équ.1.B12). Pour le taux de dissociation, la dissociation des éléments constitutifs du gypse (solvatation) avec les molécules d'eau peut être déterminée par l'équation (équ.1.B10) (Colombani, 2008; Tang et al., 2018; Zaier et al., 2021).

$$\tau_d = k_d \left(1 - \frac{C}{C_{sat}}\right)^n \quad (\text{équ.1.B11})$$

Avec  $k_d$  : coefficient de dissociation en  $\text{mol.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ,  $n$  l'ordre cinétique de la réaction,  $C$  : concentration ( $\text{mol.L}^{-1}$ ),  $C_{sat}$  : concentration de saturation ( $\text{mol.L}^{-1}$ ).

Dans le cas d'un contrôle par le transport à travers la couche limite de diffusion, le taux de transport sera déterminé via l'équation de Nernst-Brunner (équ.1.B12) (Zaier et al., 2021) :

$$\tau_t = k_t \left(1 - \frac{C}{C_{sat}}\right) \quad \text{avec} \quad k_t = \frac{D}{\epsilon} C_{sat} \quad (\text{équ.1.B12})$$

Où  $k_t$  : coefficient de transport ( $\text{mol.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ),  $\epsilon$  : épaisseur de la couche limite et  $D$  : coefficient de diffusion ( $0,9.10^{-9} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$  à  $25^\circ\text{C}$  pour le gypse)(Barton and Wilde, 1971; Colombiani, 2008; Zaier et al., 2021).

Le passage d'un mode à l'autre en cours de réaction explique cette incurvation de la courbe de dissolution. Il s'agit alors d'un régime de dissolution dit « mixte ». Cette incurvation est également observée pour d'autres minéraux comme la calcite (Brunet, 2017) ou l'halite (Appelo and Postma, 1993).

**La cinétique de dissolution du gypse inclut donc 2 paramètres : k (la constante de solubilité) et n (l'ordre chimique de la réaction). Ces 2 paramètres peuvent chacun prendre 2 valeurs selon que la cinétique de dissolution est dans sa phase initiale ou secondaire.**

### 1) Détermination des constantes de dissolution du gypse

Comme décrit ci-dessus, la constante de dissociation intervient dans la séparation des éléments constitutifs du gypse en fonction des conditions environnementales (pression, température...). Cette constante dispose également de 2 valeurs en fonction de la phase de dissolution « rapide » ou « lente ». Dans ses travaux, Jeschke et al.(2001) sur le gypse a défini la transition à 94% de la saturation tel que (éq.1.B13) et (éq.1.B14) :

$$\tau = k_{s1} \left(1 - \frac{C}{C_{sat}}\right)^{n_1} \quad C < 0.94C_{sat} \quad (\text{éq.1.B13})$$

$$\tau = k_{s2} \left(1 - \frac{C}{C_{sat}}\right)^{n_2} \quad C > 0.94C_{sat} \quad (\text{éq.1.B14})$$

À partir des courbes de dissolution (Figure 35), il a défini des constantes de dissociation et d'ordre chimique de réaction. En phase « rapide »  $k_{s1}$  vaut  $1,3 \cdot 10^{-7} \text{ mol.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$  pour un ordre chimique de réaction  $n_1$  égal à 1. Dans la seconde partie de la dissolution,  $k_{s2}$  vaut  $3 \cdot 10^{-7} \text{ mol.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$  et  $n_2 = 4,5$ .

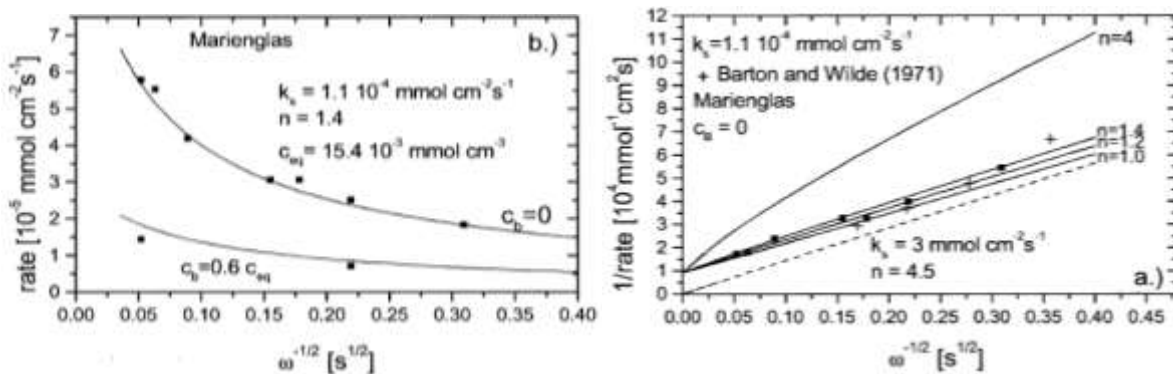


Figure 35 Détermination de la constante de dissociation et de l'ordre chimique de la réaction de la dissolution du gypse. (Jeschke et al., 2001a)

La constante de transport détermine la vitesse de diffusion à travers la couche limite des produits de dissolution. Plus la couche limite sera mince (et la vitesse forte), plus le rôle de cette constante sera important. Il est détaillé dans le point suivant la détermination de l'épaisseur de la couche limite suivant les équations de Levich et la constante de transport associée.

### 2) Effet de la vitesse sur la cinétique de dissolution

Comme énoncé ci-dessus, la vitesse de rotation sera un facteur conditionnant l'épaisseur de la couche limite ( $\epsilon$ ) (Barton and Wilde, 1971; Colombani, 2012; Zaier, 2021), une accélération de l'écoulement entraînant une réduction de son épaisseur.

La grande majorité des expérimentations réalisées en laboratoire pour étudier la cinétique de dissolution du gypse le sont à partir d'essai en agitation. Ainsi, la vitesse à l'échelle du

laboratoire (batch, disque...) est considéré à partir d'un mouvement de rotation agitant un volume d'eau et non un écoulement laminaire, qui est le cas naturel. Cette partie bibliographique considère donc la vitesse angulaire et non linéaire.

À partir d'une certaine vitesse, la couche limite devient suffisamment faible pour être jugée négligeable et la dissolution contrôlée par le transport et l'augmentation de la vitesse de rotation n'entraînera plus d'évolution de la dissolution (Figure 36).

$$\tau = K(K_0 + \alpha v)$$

De même la viscosité du fluide (dépendant de la température), diminuera l'épaisseur de cette couche de manière proportionnelle à l'évolution de sa viscosité. Au sein de cette couche, les molécules sont en interaction avec le solide et forment ainsi un écoulement laminaire à régime purement diffusif tel que défini par la loi de Fick (éq.1.B15).

$$\tau_d = -D \phi \nabla C \quad (\text{éq.1.B.15}).$$

Où  $\tau_{\text{diffusif}}$  : taux de dissolution par diffusion ( $\text{mol.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ),  $\nabla C$  : Gradient de concentration ( $\text{mol.L}^{-1}$ ),  $\Phi$  : porosité (%) et  $D$ : coefficient de diffusion ( $\text{m}^2.\text{s}^{-1}$ )

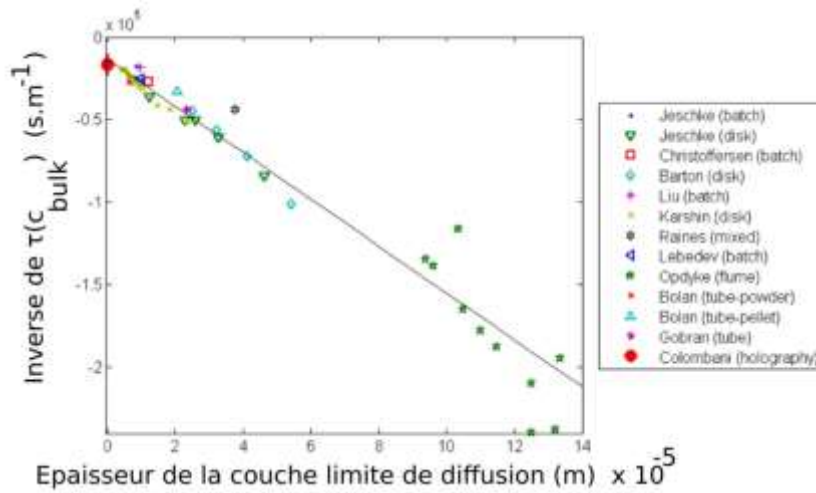


Figure 36 Relation entre le taux de dissolution et l'épaisseur de la couche limite. D'après Colombani (2012).  $C_{\text{bulk}}$  : concentration dans la couche limite.

La détermination de l'épaisseur de la couche limite est possible à partir des équations développées par Levich (1962) (éq.1.B16) permettant d'en prédire l'épaisseur en fonction de la porosité et du coefficient de diffusion sans tenir compte des dimensions du solide.

$$\varepsilon = 1.61 \left(\frac{D}{\nu}\right)^{1/3} \left(\frac{\nu}{\omega}\right)^{1/2} \quad (\text{éq.I.B16}).$$

Où  $\nu$  : viscosité cinématique ( $\text{m}^2.\text{s}^{-1}$ ) et  $\omega$  : vitesse angulaire ( $\text{rad.s}^{-1}$ )

Il est ainsi possible de déterminer un taux de dissolution lié au transport ( $\tau_t$ ) de la couche limite. Zaier (2021) reprend un coefficient de 0,5 pour convertir en coefficient de transport ( $k_t$ ) l'équation de Levich donnant l'équation suivante (éq.1.B17) :

$$k_t = 0,62 C_{\text{sat}} D^{2/3} \vartheta^{-1/6} \omega^{1/2} \quad (\text{éq.1.B17}).$$

Il a été utilisé pour l'étude des cinétiques de dissolution, des essais de poudre en solution et de disque tournant. Dans ce cas, la vitesse s'exprime en  $\text{rad.sec}^{-1}$  ou en tours par minute (tpm) et doit être prise en compte. Il est ainsi obtenu les coefficients  $k_t$  (Tableau 5).

Tableau 5 : Valeurs du coefficient de transport pour différentes vitesses de rotation.

Vitesse	tpm	0	10	20	50	75	100	150	200
	rad/s	0	1.05	2.09	5.24	7.85	10.47	15.71	20.9
kt	mmol m <sup>-2</sup> s <sup>-1</sup>	0	3.75E <sup>-19</sup>	7.50E <sup>-19</sup>	1.87E <sup>-18</sup>	2.81E <sup>-18</sup>	3.75E <sup>-18</sup>	5.62E <sup>-18</sup>	7.50E <sup>-18</sup>

Une attention particulière doit être portée aux conditions d'écoulement. En effet, le taux de dissolution augmentera de manière quasi linéaire en régime laminaire suivant la racine carrée de la vitesse de rotation (Figure 37) et un contrôle par la surface réactive. Une fois en conditions turbulentes, cette relation diminue du fait du fort amincissement de la couche limite, devenant dépendante du contrôle par le transport (James and Lupton, 1978; Raines and Dewers, 1997; Jeschke and Deybrodt, 2002; Zaier, 2021). La transition entre régime laminaire et turbulent est définie par le nombre de Reynolds (Re). Ce nombre dans le cas d'une rotation de disque se calcule à partir de la relation suivante (éq.1.B18). Si le nombre de Reynolds est inférieur à la valeur de 2000, alors l'écoulement sera laminaire. Si elle est supérieure, alors l'écoulement est dit turbulent. Le régime laminaire induit un écoulement unidirectionnel et relativement homogène du fluide. Dreybrodt and Buhmann (1991) déterminent qu'en régime turbulent la dissolution diminue pour des conduits de calcite.

$$Re = \frac{r^2 \omega}{\nu} \quad (\text{éq.1.B18})$$

Avec r : rayon du disque (m), ω : vitesse de rotation (rad/s), ν : viscosité cinématique du fluide (cm<sup>2</sup>/s).

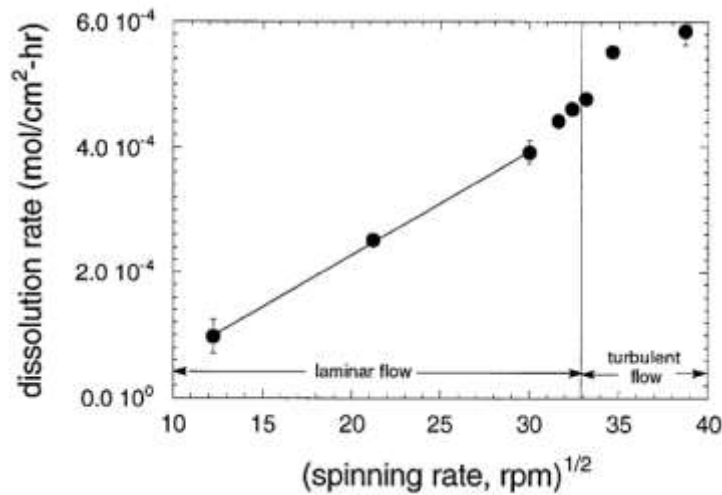


Figure 37 Relation entre tau de dissolution et vitesse de rotation. (Raines and Dewers, 1997)

### 3) Effet de la température sur la cinétique de dissolution

La température joue un rôle sur de nombreuses cinétiques de réactions chimiques, généralement en la favorisant. La loi physico-chimique déterminant cet effet est la loi d'Arrhenius (éq.1.B.19) (Lebedev and Lekhov, 1989; Klimchouk, 1996d; Zaier, 2021). Dans cette forme, l'équation ne tient pas compte du temps, ce qui est obtenu en la transformant en celle de la loi Van t'Hoff (éq.1.B.20). Ainsi la constante de dissolution du gypse est favorisée par la température suivant une relation linéaire (Figure 38).

$$k = \kappa e^{-E_a/RT} \quad (\text{éq.1.B19})$$

$$\ln\left(\frac{k_T}{k_{T_{ref}}}\right) = \frac{E_a}{R} \left(\frac{1}{T_{ref}} - \frac{1}{T}\right) \quad (\text{éq.1.B20})$$

Avec R : constante des gaz parfaits, T : température (K),  $E_a$  : énergie d'activation,  $\kappa$  : facteur pré-exponentiel ( $\text{mol.m}^{-2} .\text{s}^{-1}$ ),  $T_{ref}$  : température de référence (K).

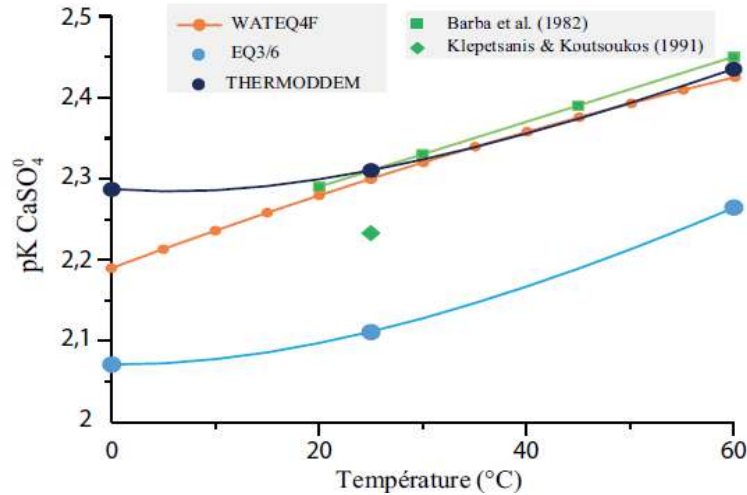


Figure 38 Effet de la température sur la constante de dissolution du gypse en fonction de la température. (Zaier, 2021)

### III. Dissolution non homogène des masses rocheuses

#### 1) Définition du phénomène de « whormhole »

Lors des essais de dissolution réalisés par percolation est apparu le phénomène de chemin préférentiel, aussi appelé « digitation », pour une partie du panel de matériaux étudiés (Figure 39). Ce phénomène est appelé whormhole par les anglo-saxons. Il s'agit de la formation de conduit macroscopique initié par une dissolution non homogène d'un volume rocheux. Ce phénomène correspond aux stades précoces de la karstification et de l'initiation des conduits karstiques.



Figure 39 Exemple de chemins préférentiels.

Les chemins préférentiels se définissent comme des conduits hydrauliques à forte conductivité. Ils se forment à partir des hétérogénéités du milieu poreux (structure, minéralogie...) et des conditions d'écoulement (composition du fluide, pression d'injection...), (Fredd and Fogler, 1998; Daccord et al., 1989, 1993; Dreybrodt and

Gabrovsek, 2003). Ces hétérogénéités peuvent être évidemment les fissures et les fractures mais également les variations des tailles de pores elles-mêmes ou encore la présence d'un minéral plus soluble dans une matrice qui le serait moins. La présence d'éléments réduisant la dissolution d'autres minéraux est également possible (Dreybrodt et al., 1996; Fredd and Fogler, 1998; Golfier, 2001; Dreybrodt and Gabrovsek, 2003; Maheshwari et al., 2013).

### *2) Mécanisme gouvernant l'initiation des chemins préférentiels*

Le phénomène de dissolution différentielle a été largement étudié sur les systèmes carbonatés pour le développement des conduits karstiques (Fredd and Fogler, 1998; Hoefner and Fogler, 1988; Golfier, 2001; Dreybrodt and Gabrovsek, 2003). Ces études se sont basées principalement sur l'injection de solution acide ou d'eau chargée en CO<sub>2</sub>. De nombreux paramètres ont ainsi été testés, comme la concentration d'acide, la température ou encore les débits d'injection.

Il résulte de ces travaux que le débit du fluide aura un rôle prédominant pour la détermination du régime de développement ou non des chemins préférentiels. Le nombre de régimes et leur définition exacte sont variables en fonction des auteurs. Trois cas principaux peuvent être retenus :

- les débits faibles où la diffusion est le moteur principal de dissolution. La dissolution est alors uniforme et ne génère pas de digitations (régime laminaire),
- Les débits intermédiaires à régime mixte où la diffusion devient minoritaire et le régime convectif dominant,
- Les débits forts sans équilibre et où les conduits vont se ramifier. Des gradients de dissolutions latéraux au conduit principal affectant la porosité peuvent se développer.

Dans sa thèse, Golfier (2001) établit sur des expérimentations de chemins préférentiels dans de l'halite un régime intermédiaire se décomposant en 3 sous-groupes en fonction du débit (Figure 40).

- Il détermine que le whormhole prend une forme conique pour des débits très faible à transpercer l'échantillon et où la diffusion est toujours dominante,
- Des débits plus forts et suffisants pour traverser les éprouvettes. A ces débits, les pores les plus larges sont soumis à l'écoulement du fluide agressif et crée un conduit principale ramifié. Dans ce cas, le débit optimum est atteint,
- Des débits plus élevés encore entraineront la mise en place du conduit principal et le développement de ramifications. Plus le débit sera important, plus leur nombre augmentera et elles seront fines.

Il décrit également une condition où le débit devient trop important et le cône de dissolution attaque l'ensemble de la surface de manière homogène. Dans ce cas, tous les pores sont pénétrés et aucun équilibre n'est établi dans la masse. Le débit optimum est le débit minimal permettant la mise en place d'un conduit traversant l'échantillon de longueur L étudié (Fredd and Fogler, 1998; Golfier, 2001).

Le développement d'un conduit et de ses ramifications sera fonction de plusieurs paramètres dépendant du fluide et du matériau testé (Fredd and Fogler, 1998; Dreybrodt and Gabrovsek, 2003; Golfier, 2001). Les paramètres dépendants du matériau seront principalement ceux définissant les conditions de circulation du fluide et le volume poral :



## CHAPITRE 1 : ETAT DE L'ART

- porosité,
- gradient hydraulique,
- perméabilité,
- géométrie dans le cas d'une fissure

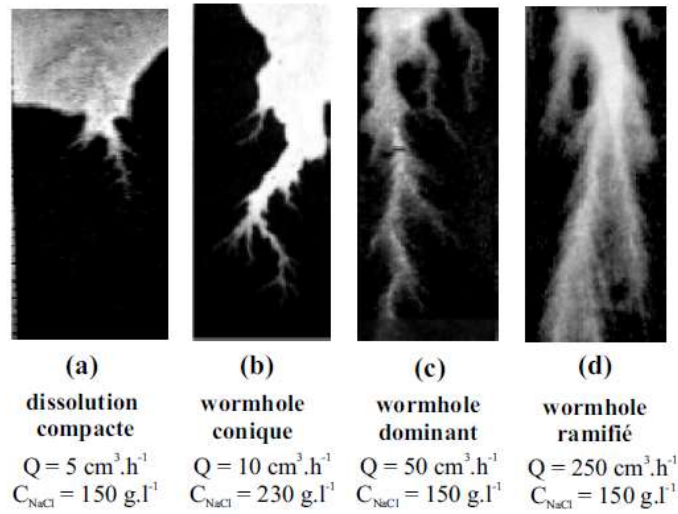


Figure 40 Radiographie des différents types de chemins préférentiels (Golfier, 2001)

Concernant le fluide, il s'agira de son agressivité vis-à-vis du matériau, pH pour des carbonates ou taux de saturation initiale pour les évaporites. Le débit d'injection sera également un élément prépondérant. De faibles gradients de pressions entraineront essentiellement une dissolution de la surface sans endommager le matériau en profondeur (Figure 41). Si les gradients sont suffisamment importants, le fluide peut pénétrer, en étant toujours sous saturé, le réseau poral et l'attaquer afin d'élargir les pores et de traverser l'échantillon. De même l'augmentation de pression augmente la quantité de ramification.

Dans leurs travaux Fredd and Fogler (1998), mettent en relation le volume de pore et le nombre de Damkhöler ( $Da$ ) pour étudier le volume nécessaire à la formation d'un canal (éq.1.B21). Ce nombre est également utilisé par (Dreybrodt et al., 1996) dans un système carbonaté. Il s'agit ici du taux de dissolution divisé par le taux de transport convectif (Fredd and Fogler, 1998; Kang et al., 2014; Li et al., 2019b).

$$Da_{mt} = aD^{2/3} \frac{l}{q} \quad (\text{éq.1.B21})$$

Où  $l$  : longueur de pore (m),  $q$  : débit d'injection ( $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ ),  $D$  : coefficient de diffusion ( $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ) et  $a$  : une constante expérimentale

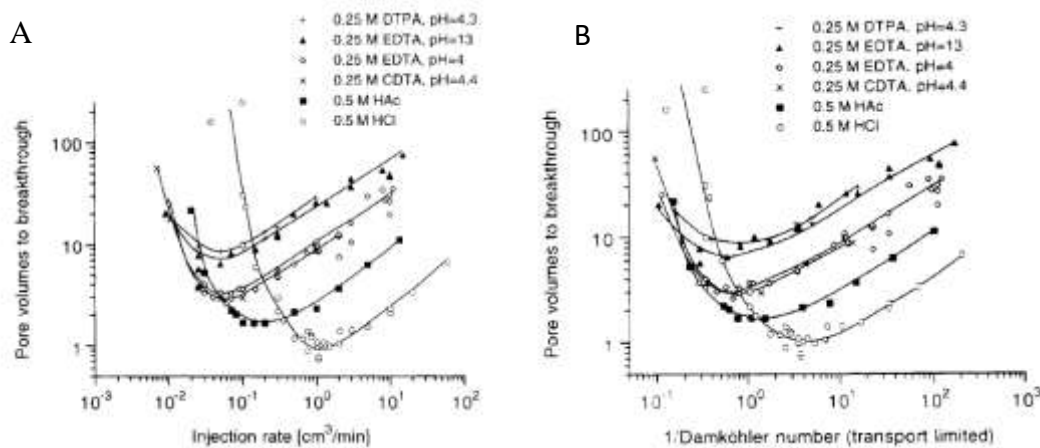


Figure 41 A : Évolution du volume injecté pour différents débit. B : Évolution du volume injecté en fonction du nombre de Damkhöler. Source (Fredd and Fogler, 1998)

## CHAPITRE 1 : ETAT DE L'ART

Un second nombre adimensionnel est également fréquemment rencontré dans la littérature. Il s'agit du nombre de Peclet ( $N_{Pe}$ ) déterminée par l'équation 1.B.22 (Daccord et al., 1989, 1993; Dreybrodt et al., 1996; Golfier, 2001; Kang et al., 2014). Ce nombre traduit le rapport entre transport convectif et diffusif. Ce nombre de Peclet est notamment utilisé dans les travaux de, Daccord et al (1989) sur le plâtre de Paris ( $\text{CaSO}_4 \cdot 1/2\text{H}_2\text{O}$ ).

$$N_{pe} = \frac{q}{Dr_0} \quad (\text{éq.1.B22})$$

Avec  $r_0$  : rayon de l'échantillon (m),  $D$  : coefficient de diffusion ( $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ),  $q$  : débit d'injection ( $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ ).

Kang et al.(2014) ont utilisé un modèle générique (sans minéral particulier) pour étudier les effets des variations de nombre de Peclet et Damkhöler sur différentes géométries de pore via l'évolution de la porosité et de la perméabilité (Figure 42). Ils en déduisent que pour une fissure simple, le nombre de Damkhöler fixera les limites inférieures et supérieures d'évolution de la porosité et de la perméabilité.  $Da$  influençant de manière inverse la limite considérée, un petit  $Da$  délimitera la limite supérieure et inversement.

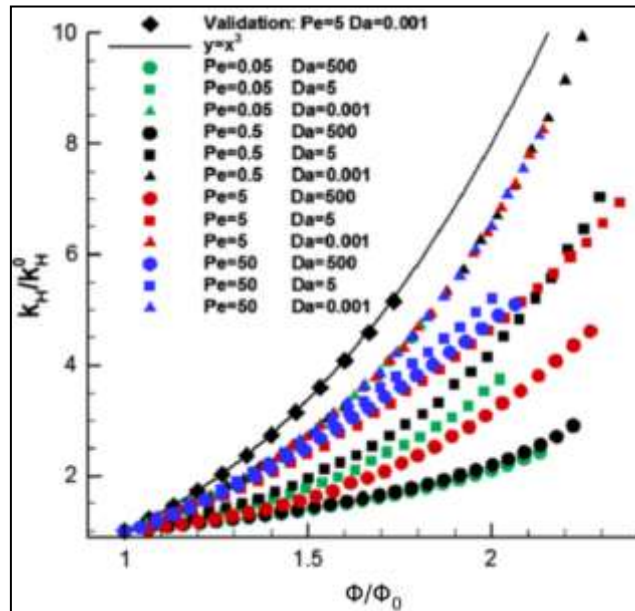


Figure 42 Évolution de la porosité et de la perméabilité pour différents  $Pe$  et  $Da$ . Source (Kang et al., 2014)

*Synthèse: La forte solubilité du gypse (2,5 g/L à 25°C) est fortement influencée par la température. Une augmentation de température favorise la solubilité du gypse jusqu'à environ 42°C. Au-delà le gypse entame sa déshydratation en anhydrite dont la solubilité est plus faible. L'effet de la vitesse d'écoulement du fluide comme un accélérateur de réaction sans en affecter la concentration finale est également abordée.*

*Le gypse suit une cinétique de dissolution dite de régime mixte suivant la théorie de la couche limite. Ainsi en fonction de l'avancement de la réaction et des conditions de vitesse et température du milieu, la cinétique de dissolution est ainsi contrôlée initialement par la solubilisation des ions du gypse. Une fois la couche proximale saturée, la vitesse de dissolution est régulée par le transport vers le milieu. Les constantes régulant ses cinétiques sont également sensibles à la vitesse et à la température.*

*Dans ce but, quelques interactions entre le gypse et d'autres minéraux communément présents avec lui dans le sol sont indiquées. Afin d'illustrer la complexité d'établir des modèles complets avec les différentes relations de la compétition où encore à la substitution.*

*Enfin, le phénomène de « whormhole » ou chemin préférentiel ou digitation est abordé. Ce phénomène de dissolution hétérogène est particulièrement étudié pour les carbonates dans l'initiation des phénomènes karstiques. Le phénomène de chemin préférentiel est généré avec des conditions identiques du point de vue externe (composition, pression d'injection...) mais avec des variations dans la structure porale du matériau (diamètre de pore, rugosité...).*

### **C. Propriétés poromécaniques du gypse**

Cette troisième partie du chapitre bibliographique fournit des généralités sur le comportement mécanique des roches (comportement élastique, propriétés plastiques...). Les lois de comportement permettent de prédire l'évolution du matériau en fonction des contraintes qui lui sont imposées (Auvray, 2003; Norton, 1929; Vakhrushev et al., 2022). Cette étape est capitale dans le dimensionnement des projets géotechniques. Le cas du gypse est détaillé de manière plus approfondie avec la description de sa résistance et de la variabilité de ses propriétés mécaniques. L'origine de cette variabilité (porosité, granulométrie...) est discutée à partir d'éléments de la bibliographie (Castellanza Riccardo et al., 2010; Moiriat et al., 2006; Bell, 1994). Des montages expérimentaux pour appréhender la dégradation du gypse sont également présentés pour dresser un bilan de l'état des connaissances sur la dégradation du gypse et replacer les travaux entrepris dans cette thèse par rapport aux travaux menés jusqu'à présent.

#### **I. Comportement rhéologique du gypse**

##### **1) Définition et identification du comportement du gypse.**

La rhéologie est la science étudiant la déformation des corps (Foucault et al., 2014). La mécanique des roches est une partie de cette science visant à étudier le comportement rocheux sous contrainte notamment dans l'objectif du contrôle de dimensionnement des ouvrages et structures géotechniques.

Les contraintes appliquées entraînent une réaction de la roche qui s'adapte en se déformant. Les principales contraintes dans la sollicitation des roches sont divisées en 3 types :

- compression : il s'agit de comprimer le matériau en exerçant une force (constante ou croissante) et de suivre le tassement (latéral et/ou axial),

## CHAPITRE 1 : ETAT DE L'ART

- traction : il s'agit d'exercer une force de traction (constante ou croissante) et de suivre l'étirement (latéral et/ou axial),
- cisaillement : il s'agit d'exercer une force perpendiculaire, latéralement à la longueur de l'éprouvette

À partir des courbes de contrainte/déformation obtenues (Figure 43), il est possible de déterminer un type de comportement caractéristique de la roche étudiée. Les principaux modes de déformation pour les roches sont de type plastique et élastique. Dans le comportement élastique (Figure 43a), la porosité va d'abord se fermer sous l'effet de la compression (Stade I et II) avant d'initier de nouvelles fissures qui se propagent (Stade III et IV) et finalement le matériau rompt brutalement.

Le comportement élastique linéaire se caractérise par un retour à une déformation initiale lors du déchargement de la contrainte (réversibilité des déformations). Dans le cas non linéaire, la courbe de déchargement ne se superpose pas avec celle du chargement, ainsi la déformation n'est pas complètement réversible (Giot et al., 2023; François et al., 1992).

Dans le mode élasto-plastique (Figure 43b), une roche réagit de manière élastique pour de faible contrainte jusqu'à une limite d'élasticité ( $\sigma_1$ ). Au-delà, la déformation devient non réversible et de type plastique. Ce mode correspond à la dislocation des minéraux entre eux et à leur « glissement ». En effet, la mise sous contrainte d'une roche constituée de plusieurs grains va entraîner une diminution de la porosité, la compression rapprochant les minéraux (Stade I). Une fois cette porosité close, une phase de déformation élastique puis de fissuration (Stade II à IV) se développe. Une fois la contrainte maximale atteinte, le matériau entre dans une phase de rupture cassante. La résistance devient alors nulle (Stade V).

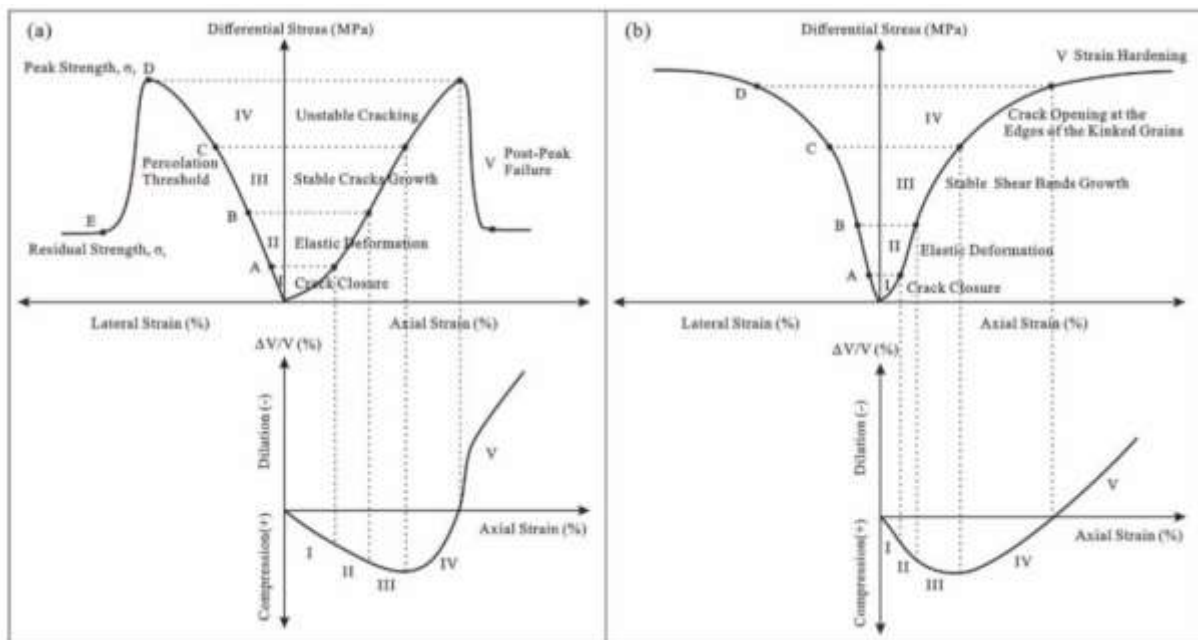


Figure 43 : Diagramme montrant les courbes typiques de contrainte différentielle-déformation axiale et de déformation volumétrique-déformation axiale des essais de compression triaxiale pour les roches cassantes (a) et les roches ductiles (b) (Wu et al., 2021)

Le gypse possède un comportement de type élasto-plastique (Massieu, 1996; Moiriat, 2001; Auvray, 2003; Giambastiani, 2005; Khaledi et al., 2016; Zhu Yanbo et al., 2021). Ainsi pour de faibles contraintes, le gypse a un comportement élastique accompagné d'une diminution de la porosité. Pour de plus fortes sollicitations, le gypse ne présente pas une rupture nette mais

les grains sous forme de feuillets constitutifs de la roche tendent à glisser latéralement à l'effort. Une des origines du comportement plastique du gypse est liée à sa structure minéralogique tabulaire (Figure 44). Cet aspect en « feuillets superposés » constitue une structure avec des plans de faiblesse favorisant la propagation de fissure et leur coulissage dans un phénomène proche de la desquamation (Zhu Yanbo et al., 2021; Wu et al., 2021).

Dans sa thèse sur les exploitations de gypse souterraines, Auvray (2003) observe sur des blocs de gypse de différents âges d'exploitation qu'avec le temps, le gypse parisien développe un caractère élastique mais maintient une rupture plastique (ductile). Le travail d'Auvray intègre également un gypse du Jura (39) de plus faible porosité initiale du fait du contexte orogénique de sa localisation. Pour ce dernier, l'âge d'exploitation (et donc la durée d'altération en galerie) n'affecte pas le comportement du matériau qui reste principalement plastique.

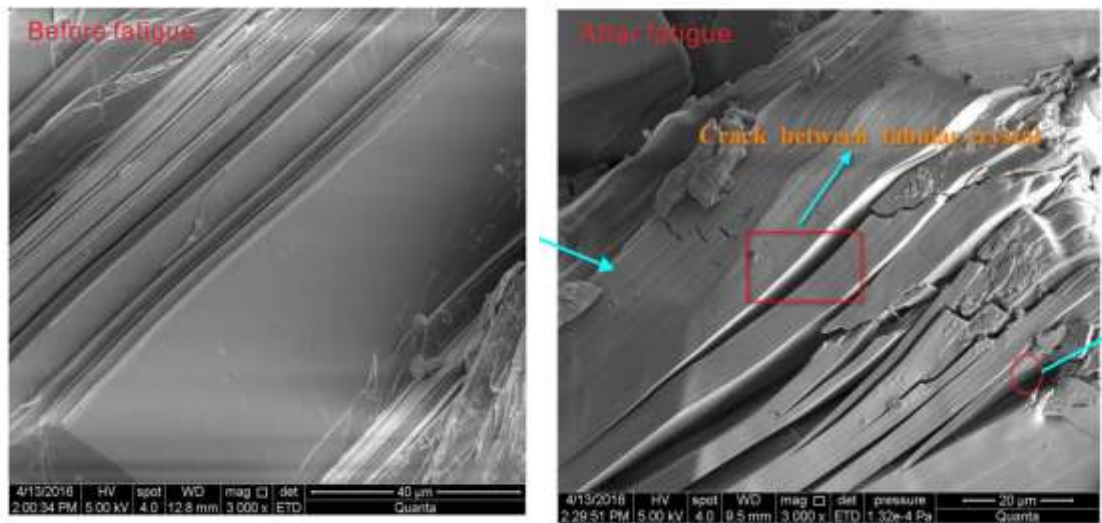


Figure 44 : Visualisation au MEB de la rupture tabulaire du gypse (Zhu Yanbo et al., 2021)

## 2) Modèle de Mohr Coulomb

Le modèle de Mohr-Coulomb est le modèle qui décrit la réaction de matériau fragile soumis à des contraintes mécaniques (éq I.C.1). Il permet également de définir les limites de rupture du matériau. Ce critère fait partie des modèles les plus couramment utilisés pour les roches, dont le gypse (Li et al., 2022; Auvray, 2003; Giambastiani, 2005; Wu et al., 2021; Fracsima, 2016; Mohammed and Mahmood, 2018).

Le modèle de Mohr-Coulomb est généralement écrit de la manière suivante en déterminant la contrainte de cisaillement (éq 1.C.1). Cette méthode de détermination de la résistance repose principalement sur deux critères à savoir, la cohésion (C) et l'angle de frottement ( $\Phi$ ) qui vont définir la contrainte suivant l'équation ci-dessous ;

$$\sigma_t = \sigma \tan (\Phi) + c \quad (\text{éq 1.C.1})$$

Avec  $\sigma_t$  : contrainte de cisaillement (MPa),  $\sigma$  : contrainte normale (MPa)

Le Tableau 6 regroupe des valeurs présentes dans la littérature pour l'estimation de ces paramètres. Ces résultats sont relativement hétérogènes avec des angles de frottement de 26 à 47° et des cohésions de 1 à 10 MPa. Le gypse présente ainsi une forte diversité dans ces paramètres en fonction du contexte où il se localise. Le manque d'informations quant aux contextes d'origines des gypses de ces travaux, limite une interprétation poussée. Il peut être néanmoins supposé que la compaction d'une masse de gypse en contexte orogénique tend à en augmenter la cohésion, ce qui est le cas de Auvray, (2003) où le gypse de contexte

orogénique (Grozon) possède une cohésion double de celle de contexte sédimentaire (Livry-Gargan).

Tableau 6 Valeurs des paramètres du modèle de Mohr-Coulomb dans la littérature pour le gypse

		angle de frottement (°)	cohésion (MPa)	Coefficient de Poisson
	(Sitthimongkol, 2021)	26	2.0	0.2
	(Giambastiani, 2005)	24	10,8	0,27
	(Luo et al., 2019)	30	1.24	///
	(Chang et al., 2019)	21	9.1	///
	(Mohammed and Mahmood, 2018)	33	5.1	///
	(Serratrice, 2012)	40	0.25	0.24
(Auvray, 2003)	Grozon	45	8	0,3
	Livry-Gargan	47	4	0,3

### 3) Comportement différé du gypse (fluage)

Le comportement différé correspond à la déformation d'un matériau soumis à une contrainte pendant un temps long (mois, années...). Ce comportement correspond à la réponse d'un massif sur le long terme et à l'évolution de la contrainte sur un ouvrage. Dans le cas du gypse, ce comportement est principalement étudié pour les carrières souterraines où l'exploitation du gypse est intense. La principale méthode de suivi des comportements de type différé sur les roches est associée aux essais de fluage (Auvray, 2003; Moiriat, 2001; Massieu, 1996; Bérest et al., 2019; de Meer and Spiers, 1999; Ramon et al., 2021) ou aux essais de relaxation (voir glossaire). Ainsi, Auvray (2003) a réalisé des essais de fluage en atmosphère saline pour étudier l'effet de l'humidité sur la résistance de piliers de carrières gypsifères. Les atmosphères salines à partir de solutions saturées permettent de simuler des teneurs en humidité relative constantes et spécifiques à chaque sel utilisé. Il utilise ainsi 5 solutions salines permettant d'imposer des atmosphères humides de 31 à 95%. Ces essais de fluage visent à détailler le comportement mécanique du gypse. La contrainte appliquée en début d'essai est de 4 MPa soit environ 25 à 30% de la contrainte de rupture selon les éprouvettes. Ces résultats permettent d'établir 3 phases dans l'évolution du matériau (Figure 45). Une première phase rapide de contraction correspondant à la réaction immédiate du matériau au chargement avant de se stabiliser, une seconde phase avec une faible déformation se faisant à vitesse constante et une troisième phase de déplacement rapide correspondant à une rupture du matériau. Cette troisième phase est présente sur une partie seulement des échantillons.

Dans son étude, (Auvray, 2003) utilise la loi de Lemaître (Lemaitre et Chaboche, 1985) pour traduire le comportement du gypse dans la phase primaire (éq 1.C.2).

$$\dot{\gamma}_{vp} = \left(\frac{q}{K_r}\right)^{N_v} \gamma_{vp} \frac{N_v}{M_e} \quad (\text{éq 1.C.2})$$

Avec  $\gamma_{vp}$  : distorsion viscoplastique,  $N_v$  exposant de viscosité,  $M_e$  : exposant d'écrouissage,  $K_r$  : coefficient de résistance,  $q$  : déviateur de contrainte

Cette loi repose sur le principe du « strain-hardening » (Zhu et al., 2019; Li et al., 2022). Dans ce cas, la déformation détermine la vitesse de fluage. Cette loi est généralement opposée à la

théorie « time-hardening » où la vitesse de fluage est fonction du temps. (François et al., 1992).

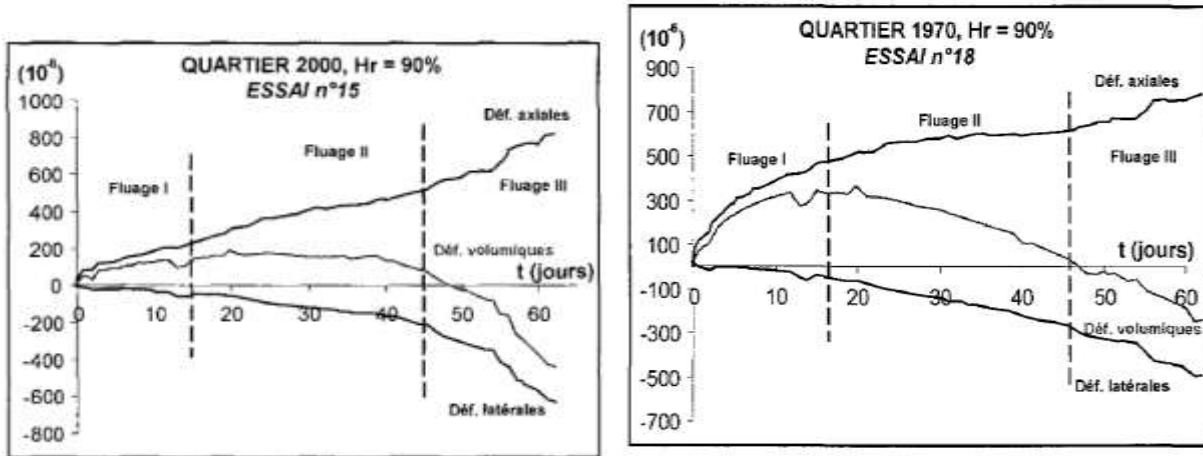


Figure 45 Essai de fluage sous chargement constant en atmosphère humide à 90% du gypse de Livry-Gargan (à gauche) et de Grozon (à droite). (Auvray, 2003)

Auvray (2003) complète sa description du comportement du gypse pour le fluage secondaire à partir de la loi de Norton-Hoff (1929) (éq 1.C.3).

$$\dot{\gamma}_{vp} = B(T)q^\alpha \quad (\text{éq 1.C.3})$$

Avec B(T) : fonction dépendante de la température, A : constante du mécanisme de déformation.

$$B = B_0 e^{\frac{Ea}{RT}} \quad (\text{éq 1.C.4})$$

Où B<sub>0</sub> : facteur pré-exponentiel, Ea : énergie d'activation (J.mol<sup>-1</sup>), R : constante des gaz parfaits, T : température absolue (K).

Il s'agit également d'une loi de comportement viscoplastique. Cette loi est fréquemment utilisée (Abd-Sharifabadi, 1981; Li et al., 2022; Gordiliy and Berest, 2022; Coussy, 2010; Auvray et al., 2004; Hoxha et al., 2005; Temam, 1986; Vakhrushev et al., 2022) pour simuler des déformations persistantes en fonction de l'intensité et de la vitesse de chargement. Cette dernière présente l'avantage de prendre en compte la température et son effet sur la viscosité à partir du coefficient B (éq 1.C.4). Le mode de déformation est quant à lui déterminé par la constante α. Sa valeur détermine le mode de déplacement (glissement, diffusion, dislocation) (Boidy, 2002; Auvray, 2003; Xie et al., 2019).

La troisième phase d'accélération de la déformation avant la rupture du matériau n'est observée que pour des humidités importantes ou des contraintes suffisantes à la génération de la rupture (Massieu, 1996; Moiriat et al., 2006). Peu de modèles permettent de décrire cette phase. Auvray (2003) a donc développé ainsi une loi de comportement différé unifiant les lois de Lemaître et de Norton-Hoff (éq 1.C.5) et (éq 1.C.6).

$$f(q, \gamma) = \begin{cases} k \cdot q^{n-m} \cdot \gamma^{-b} & \text{si } \gamma \leq \gamma_t \\ 1 & \text{si } \gamma \geq \gamma_t \end{cases} \quad (\text{éq 1.C.5})$$

Avec

$$\gamma_t(q) = k^{\frac{1}{b}} \cdot q^{\frac{n-m}{b}} \quad (\text{éq 1.C.6})$$

Avec n : puissance de la contrainte de la loi de Lemaître, m : puissance de la contrainte de la loi Norton, b : un scalaire positif, γ<sub>t</sub> : valeurs de distorsion critique.

## CHAPITRE 1 : ETAT DE L'ART

Dans leurs travaux de 2019, Zhu et al mettent en place un suivi de résistance en compression de la dégradation du matériau gypseux immergé. L'étude ne précise pas si l'eau est saturée ou non en gypse dissous pour limiter la dissolution. L'objectif est de suivre la réduction de résistance du gypse en fonction de la saturation en eau de l'éprouvette.

Zhu et al (2019) réalisent ainsi des éprouvettes de gypse issu d'une carrière en exploitation. La profondeur de prélèvement est de 300 m ce qui induit des phénomènes de compaction important du matériau. De plus, le gypse apparait de type « orogénique » (avec des remaniement/plissement au cours de l'histoire du site).

Les échantillons sont déposés secs dans le bac d'immersion et une simple pesée permet de déterminer la quantité d'eau ayant pénétré dans l'éprouvette après 1 à 30 jours d'immersion. On obtient des éprouvettes avec différentes saturations avant l'essai en compression.

Les résultats de l'étude sont détaillés dans le Tableau 7. Chaque point de mesure est établi à partir de 3 éprouvettes. Zhu et al (2019) notent une réduction de la résistance ( $R_c$ ) et du module d'élasticité  $E$  avec l'augmentation de la saturation en eau. Cette réduction est attendue compte tenu de l'augmentation de la saturation de la pression interstitielle lorsqu'une contrainte de compression est appliquée, en plus de la dissolution. On note en revanche l'augmentation du coefficient de Poisson avec la saturation, le matériau devenant plus facilement déformable avec la saturation. Les auteurs de l'étude décrivent la réduction de propriété mécanique grâce à la réaction suivante (éq 1.C.7) :

$$\sigma = E_0 \varepsilon \left[ 1 - \left( \frac{\varepsilon}{\varepsilon_s} \right)^{n_r} \right] \quad (\text{éq 1.C.7})$$

Avec  $\sigma$  : contrainte (MPa),  $\varepsilon$ : déformation axiale (mm),  $\varepsilon_s$  : constante de déformation (mm),  $E_0$  : module d'élasticité initiale (GPa),  $n_r$  coefficient de rupture.

**Tableau 7 Évolution de la résistance à la compression du gypse en immersion. D'après (Zhu et al., 2019)**

Durée de l'immersion		t=0 initial	1j	7j	15j	30j
Prise de masse (%)	moyenne	0.25	0.3	0.43	0.7	0.87
	écart type	0.07	0.03	0.03	0.05	0.20
Résistance en compression $R_c$ (MPa)	moyenne	32.0	31.0	25.3	23.7	20.8
	écart type	4.40	3.60	2.10	2.10	1.80
Module élastique $E$ (GPa)	moyenne	4.10	4.07	3.49	3.07	2.55
	écart type	0.16	0.14	0.32	0.10	0.06
Coefficient de Poisson	moyenne	0.17	0.18	0.20	0.21	0.34
	écart type	0.01	0.01	0.01	0.03	0.04

Leur modèle est ensuite complété par une loi de comportement visco-élasto-plastique non linéaire (éq 1.C.8). Cette dernière est établie à partir d'essais cycliques appliqués sur des éprouvettes de gypse et en modifiant les lois de Hooke et de Kelvin (Zhu Yanbo et al., 2021). Cette loi de comportement visco-élasto-plastique repose sur 5 paramètres déterminés expérimentalement dont un coefficient  $m$  compris entre 0 et 1 donnant le comportement de



l'éprouvette à chaque pas de temps, 0 étant un état purement élastique et 1 un état purement visqueux. Ce modèle semble permettre de reproduire numériquement les phases I et II mais également la phase III d'accélération du déplacement avant la rupture (Figure 46).

$$\frac{d\varepsilon}{dt} = e^{-\left(\frac{E_k}{\eta_1}\right)N.T} \frac{E_k}{\eta_1} T + \left(\frac{\sigma_{eq}-\sigma_s}{\eta_0}\right)^{\frac{1}{m}} (NT)^{\left(\frac{1}{A}\right)-1} T \quad (\text{éq 1.C.8})$$

Où  $\varepsilon$  : déformation (m),  $t$  : temps (s),  $T_c$  : cycle de fatigue,  $E$  : module d'élasticité (GPa),  $N_c$  : nombre de cycle,  $\eta_0$  : coefficient de fatigue du mode visqueux,  $\eta^1$  : coefficient de viscosité du corps de Kelvin ( $\text{Pa.s}^{-1}$ ),  $\sigma_s$  : contrainte de rupture (MPa),  $\sigma_{eq}$  : contrainte moyenne (MPa),  $m$  paramètre expérimental définissant le mode mécanique.

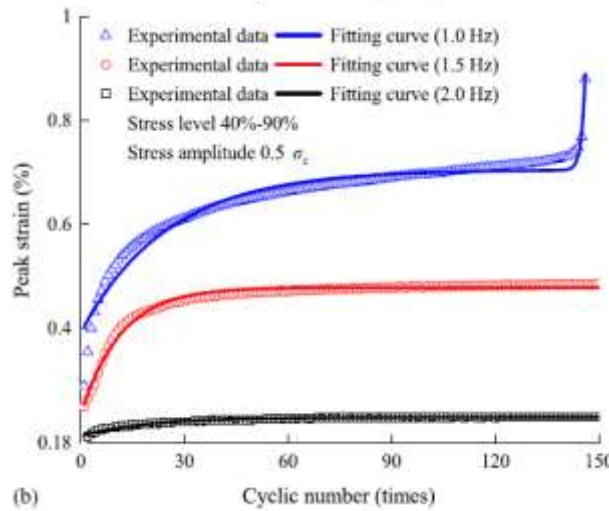


Figure 46 Résultats de l'équation 1.C.8 pour ajuster les résultats expérimentaux de Zhu Yanbo et al., (2021)

Les travaux de Zhu et al (2019) portent sur des essais de sollicitations cycliques. Or dans le cas d'une carrière souterraine, le paramètre nécessaire à l'analyse de la stabilité de l'ensemble est la contrainte reprise par chaque pilier. Ce aspect a été étudié par le Laboratoire Central des Ponts et Chaussées (LCPC) dans les années 1990 suite à de nombreuses remontées de fontis dans le massif de l'Hautil suite à des venues d'eau (Massieu, 1992, 1996; Massieu and Martinet, 1996; Moiriat, 2001). Il s'agit d'un massif à l'Ouest de Paris fortement exploité pour son gypse jusque dans les années 1970 (plus de 1000 Ha exploités)(DRIRE, 1995). Afin de déterminer la vitesse de dégradation des piliers, une campagne d'essais de fluage a été effectuée avec différents taux de chargements établis à partir de la résistance en compression saturée (Tableau 8).

Tableau 8 : Taux de contrainte appliquée et valeurs correspondantes de Massieu (1996)

Taux de contrainte imposée (% de la Rc moyenne)	33	37	40	41	44	48	49	60
Valeurs de contrainte (MPa)	9,3	11,1	13,5	13,5	13,9	13,9	15,2	16,0
Contrainte appliquée (MPa)	18,3	21,8	26,5	26,5	27,3	27,3	29,8	31,4

Ces essais sont réalisés dans des conditions saturées sans renouvellement de l'eau. Ainsi la dissolution reste négligeable dans l'évolution de l'éprouvette. Les résultats sont présentés en Figure 47.

Les courbes de fluage mettent en évidence de 3 à 4 phases selon la durée et la contrainte exercée. La phase d'accélération en amont de la rupture peut ne pas être active si l'essai est arrêté prématurément ou la contrainte insuffisante. Auvray (2003) divise ses courbes de fluages en 3 parties mais dans le cas présent, les courbes montrent 4 zones. La partie de fluage stabilisé (II) se subdivise en effet en 2 parties (B et C) avec une transition non immédiate depuis la mise sous contrainte (stade I).

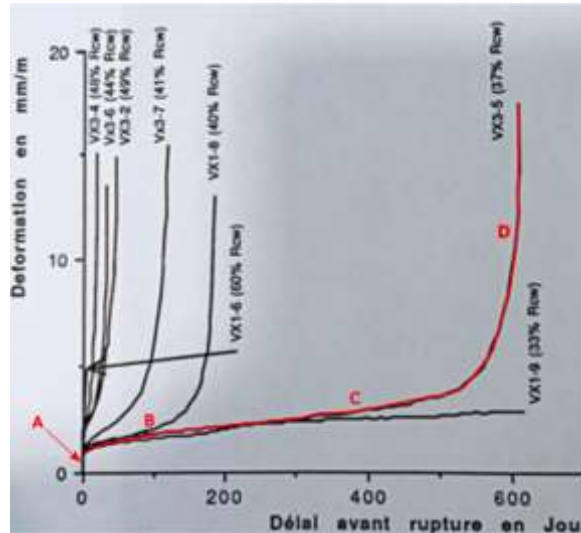


Figure 47 Effet du taux de chargement sur le délai de rupture. (Massieu, 1996) avec A : déformation élastique instantanée, B : phase de fluage transitoire ( $\approx 100$  jours), C : phase de fluage stable (à vitesse constante), D : phase de fluage accéléré, très développée.

L'analyse des résultats de Massieu (1996) montre que pour n'importe quel niveau de chargement, les éprouvettes ne se stabilisent pas complètement : l'éprouvette avec le plus faible niveau de chargement n'atteint pas le stade d'accélération mais le déplacement est permanent. Ainsi pour une durée suffisamment longue, on suppose que la phase d'accélération et de rupture sera atteinte.

Ces résultats sont similaires à ceux obtenus par (Moiriat, 2001) également sur des gypses saccharoïdes parisiens. Sans le mesurer au moment de l'initiation du stade III, une augmentation du volume des éprouvettes se produit puis l'apparition de fissure de forme de losange sur le corps d'éprouvette. Ce mode de rupture correspond à une rupture intergranulaire de décohérence des grains (fissuration). Moiriat (2001) établit à partir de ces résultats et de la granulométrie (taille de grain) une loi de comportement de type Norton-Hoff (éq 1.C.9).

$$\sigma_{l,max} = \sigma \cdot [1 - \frac{n}{m}] \quad (\text{éq 1.C.9})$$

Avec n : caractéristique expérimentale, m : constante expérimentale valant 8,9,  $\sigma_{l,max}$  : contrainte maximale (MPa) et  $\sigma$  : contrainte réelle (MPa)

Synthèse : Dans cette partie, les deux comportements principaux des roches (comportement élastique et élasto-plastique) ont été décrits ainsi que quelques lois de comportement couramment utilisés dans les travaux sur le gypse pour apprécier la résistance instantanée du matériau et son évolution temporelle. Le modèle de Mohr-Coulomb est parmi les plus utilisés dans la littérature pour décrire le comportement du gypse.

II. **Propriétés poromécaniques du gypse**

1) *Relation entre porosité et résistance mécanique*

La porosité correspond à l'ensemble du volume de vide pour un volume de matériau donné. La porosité est décrite de manière plus approfondie dans le chapitre suivant en décrivant les méthodes de mesures de ses différents sous ensemble (accessible, piégée...). Pour de nombreuses roches et le gypse en fait partie (Mohammed and Mahmood, 2018), il est possible d'établir une relation avec la résistance mécanique de manière inverse. C'est-à-dire qu'une augmentation de la porosité tend à réduire la résistance. Ce n'est pas le seul facteur pouvant affecter la résistance mécanique d'une même formule minéralogique.

Le gypse est comme déjà énoncé une roche évaporitique c'est-à-dire issu de la précipitation de minéraux dans une solution saturée. Les minéraux s'accroissent et précipitent avant de former une masse compacte par accumulation et recouvrement sur le fond de la zone de dépôt. Ils peuvent ensuite évoluer via des cycles de déshydratation-réhydratation comme ce fut le cas pour le gypse albastroïde du lutétien ou des diapirs du sud de la France (Fabre and Dayre, 1982; Toulemont, 1986). Ces différences dans les conditions de précipitations et d'histoire géologique peuvent ainsi générer de fortes disparités de porosité (Tableau 9). Cette grande variabilité est également présente dans de nombreuses roches sédimentaires comme les calcaires ou les grès (Bousquie, 1979; Tomachot, 2002; Demarco et al., 2007; Coppée, 2018; Vigroux, 2020). Dans le cas de ces roches, la différence peut venir du taux de cimentation (quantité.), de la nature de la phase de liaison (de ciment ou matrice) et des composants structuraux (oolithes, bioclastes...). L'altération avec l'augmentation de la porosité peut aussi être un facteur à prendre en compte.

Le Tableau 9 met en évidence une distinction entre gypse localisé en contexte sédimentaire et orogénique avec une différence notable de porosité. Les gypses de zones orogéniques correspondant aux gypses des Alpes (saccharoïdes à interlits) et de la région toulonnaise possèdent des porosités globalement plus faibles (moins de 8%), que la porosité faible à modérée (inférieure à 20%) des gypses formés dans un contexte sédimentaire peu impacté par les remaniements forts comme des plissements (Figure 48). La porosité apparaît ainsi comme plus diversifiée dans le contexte sédimentaire, la compaction la diminuant dans le contexte orogénique. Cette diversité est également notée dans le Tableau 9 au travers de la porosité allant de 3,5 % à plus de 15% selon les auteurs pour le gypse francilien. Cette porosité peut être localement supérieure du fait d'altérations prononcées. La porosité est principalement fonction de l'espace intergranulaire des échantillons, de la phase de liaison (cimentation) et du niveau de fissuration.

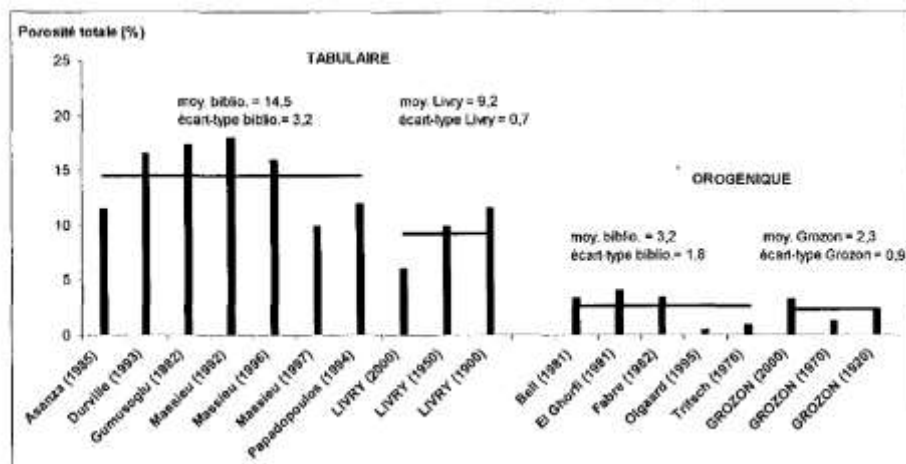


Figure 48: impact du contexte tectonique sur la porosité du gypse (Auvray, 2003)

## CHAPITRE 1 : ETAT DE L'ART

**Tableau 9 Propriétés poromécaniques du gypse. \* tirées de Auvray (2003). BP : bassin parisien**

	Source	Lieu	Age	Porosité totale (%)	R <sub>c</sub> (MPa)	Masse volumique (g.cm <sup>-3</sup> )	Vitesse du son V <sub>p</sub> (m.s <sup>-1</sup> )
Contexte de bassin sédimentaire	(Yin et al., 2017)	Chine	Paléogène	6,6- 8,1	12,8-34	2,4	--
	*Asanza (1985)	BP	Eocène	11,5	21,5	2,24	4000
	*Durville (1993)	BP	Eocène	16,6	--	2,3 - 2,5	2000-4500
	(Filliat, 1981)	BP	Eocène		8 MPa	2,15	--
	*Gumusoglu (1982)	Turquie	Actuel	17,4	20,4	2,28	--
	(Massieu, 1992)	BO	Eocène	17	15,5	2,0	3016
	*Massieu (1996)	BP	Eocène	16	12,5	--	4000
	*Massieu (1997)	BP	Eocène	10	17,7	2,1	--
	*Papadopoulos (1994)	Grèce	Néogène	12	8,3	2,1 - 2,7	--
	Moiriat (2001)	BP	Eocène	4 – 12,1	7,6 – 25,6	2,1 – 2,2	2433-4431
	Auvray (2003)	BP	Eocène	5	17.3	2,33	2960
	Moiriat et al. (2006)	BP	Eocène	3,5 - 15,5	13,7 - 23,5	--	--
	(Castellanza et al., 2010)	Italie	Trias	--	16	--	--
	Bustamante et al. (2020)	Espagne	Oligocène	0,7 –13,8	26,6	2,2	3128
	Zhu Yanbo et al. (2021)	Chine	Trias	--	11,9	1,9	--
Wu et al. (2021)	Chine	Eocène	2,87	--	2,28	4964 - 5058	
Contexte orogénique	*Bell (1981)	Angleterre	Permien	3,4	30,5	--	--
	(Singh et al., 1987)	Inde	--	0,9 – 2,9	26 -33	--	--
	Bell (1994)	Angleterre	Trias	3,5 – 7,5	18,2–102,9	2,2 – 2,8	2710 – 3390
	*El Ghorfi (1991)	Alpes	Trias	4,6	27,5	--	--
	*Fabre (1982)	Italie	Trias	1,3 - 6	34,5	--	--
	*Piguet (1986)	Jura	Trias	0,5	28,5	--	--
	*Olgaard (1995)	Jura	Trias	0,5	--	--	4000
	Fabre et Dayre (1982)	Alpes	Trias	1,3 - 6	20 - 49	2,23 - 2,32	--
	Auvray (2003)	Jura	Trias	<1	34.5	2,34	2230
	(Serratrice, 2012)	Provence	Trias	--	13.1	2,5	--
	(Bertolus et al., 2017))	Provence	Trias	--	3,3 - 29,6	2,2 - 2,3	1550 – 3700
(Zhu et al., 2019)	Chine	--	--	32	--	--	

Cet effet de la compaction en contexte orogénique est également visible sur la résistance mécanique (R<sub>c</sub> et V<sub>p</sub>) qui est globalement plus importante que pour les gypses formés en contexte sédimentaire (Tableau 9). La résistance en compression est supérieure à 25 MPa pour les gypses orogéniques contre des valeurs entre 10 et 20 MPa pour ceux des bassins sédimentaires. Ces valeurs de résistance à la compression comprises entre 10 et 50 GPa environ font du gypse une roche à la résistance modérée à faible selon les classifications (Giambastiani, 2005; Nexer, 2015) Figure 49.

La porosité apparaît dans le Tableau 9 comme un facteur influençant la résistance mécanique (Figure 49). L'augmentation de la porosité diminuant la quantité de matière pour un même volume, un lien entre ces deux paramètres apparaît en recensant les résultats de la littérature. La relation linéaire entre porosité et résistance pour le gypse montre cependant une pente relativement faible avec un coefficient  $R^2$  de seulement 0,5 (Giambastiani, 2005; Mohammed and Mahmood, 2018). Ce faible coefficient peut s'expliquer par le faible nombre de mesures entre 5 et 10% de porosité référencée par un manque de points ou encore la non distinction des différents faciès (car peu d'indications sont données). Ainsi pour expliquer la résistance en compression, d'autres facteurs peuvent et doivent être pris en compte que la seule porosité.

Parmi ces facteurs, l'augmentation de la saturation va entraîner une réduction de la résistance en compression (Demarco et al., 2007; Vasarhelyi and Ván, 2006; Hawkins and McConnell, 1992) comme pour de nombreuses roches. Cette diminution est temporaire et revient à l'état initial avec le séchage. Cet effet a également été démontré pour le gypse (Sadeghiamirshahidi and Vitton, 2019) et peut s'avérer important avec une réduction de 10 MPa pour une absorption d'eau de l'ordre de 1% (Zhu et al., 2019).

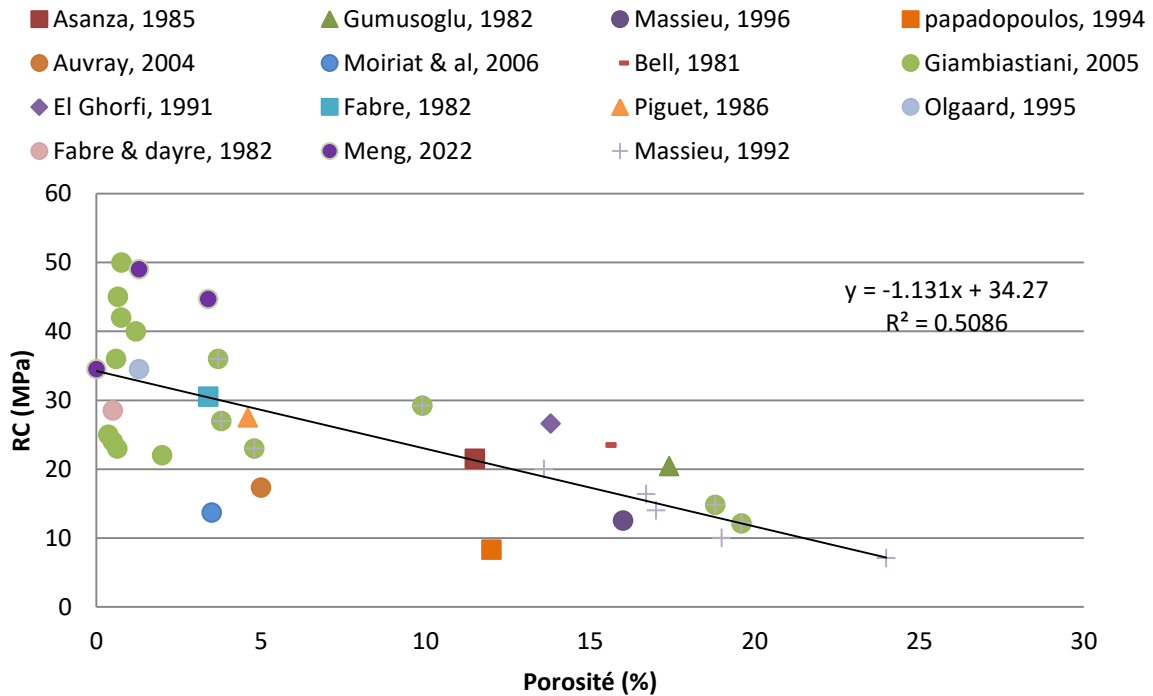


Figure 49 Relation entre résistance en compression et porosité du gypse d'après la littérature

Les résultats de Massieu (1996) montrent également une réduction de moitié de la résistance mécanique du gypse une fois saturé (Figure 50). L'origine de ce phénomène s'explique principalement par l'effet de la pression interstitielle de l'eau dans la porosité lors de la mise sous contrainte du matériau, cette pression favorisant la mise en place et le développement de nouvelles fissures. D'autres hypothèses, comme la réduction de la tension capillaire (Courard and Michel, 2003), la réduction de la friction au niveau des fissures et la stratification (Van Eeckhout, 1976), la présence d'argiles dans la roche gypseuse (Erguler and Ulusay, 2009) ou encore l'altération à l'échelle micro de ponts calciques sont avancées (Ciantia and Hueckel, 2013; Ciantia et al., 2015).

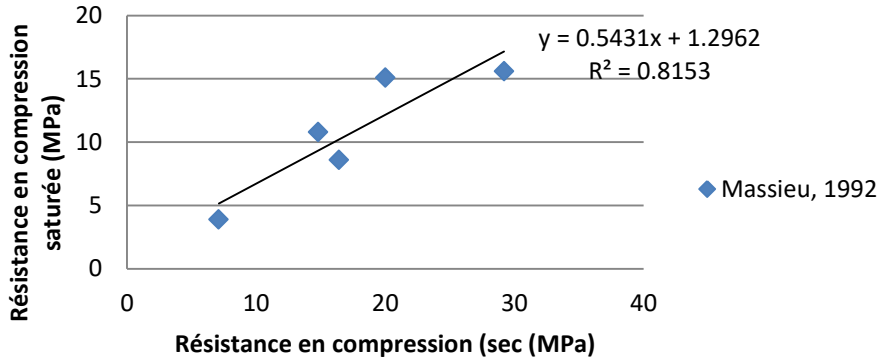


Figure 50 Effet de la saturation sur la résistance en compression du gypse (Massieu, 1992).

## 2) Détermination des principaux paramètres mécaniques

À partir de la mesure de la vitesse de propagation des ondes, il est possible de calculer un module d'élasticité dynamique ( $E_{dyn}$ ) et le coefficient de Poisson ( $\nu$ ). Ce module est également quantifiable à partir de la loi de Hooke dans les essais d'écrasement. Les moyens permettant cette détermination et leurs protocoles sont détaillés dans la description des méthodes au chapitre suivant. La relation entre ces valeurs et leurs transpositions au gypse correspond à l'équation (éq1.C.10) (Giot et al., 2023; Ciantia and Hueckel, 2013; Sitthimongkol, 2021).

$$\varepsilon = \frac{1+\nu}{E} \sigma - \frac{\nu}{E} tr \sigma_l \quad (\text{éq 1.C.10})$$

Avec  $\varepsilon$  : déformation (m),  $\sigma$  : contrainte appliquée (MPa),  $E$  : Module d'élasticité (MPa),  $\nu$  : Coefficient de Poisson

Une revue de la littérature montre la même hétérogénéité au niveau des résultats que celle observée pour la résistance en compression (Tableau 10).

Tableau 10 Module d'élasticité et coefficient de Poisson dans la littérature.

	Module d'élasticité Via vitesse du son (GPa)	Module d'élasticité Via compression (GPa)	Coefficient de Poisson	
(Sitthimongkol, 2021)	13,9	8,9	0.2	
(Liang et al., 2012)		6,8	///	
(Bustamante et al., 2020)	22,2	///	///	
(Yin et al., 2017)	///	10 – 26	///	
(Giambastiani, 2005)	///	23,1	0,27	
(Serratrice, 2012)	///	///	0.24	
(Auvray, 2003)	Grozon	37,5	37,8	0.34
	Livry-Gargan	21,5	18,85	0.24

Le différence des modules d'élasticités entre propagation d'ondes et compression provient des différences entre ces 2 méthodes. La vitesse du son est une mesure où l'éprouvette peut se déformer librement alors que l'essai de compression maintient l'éprouvette non libre. Les comportements similaires de la résistance en compression ( $R_c$ ) et du module élastique (vitesse du son) apparaissent comme logiques compte tenu de l'imbrication des méthodes de détermination (éq 1.C.11)

$$\sigma = E\varepsilon \text{ (éq 1.C.11)}$$

Au final, le gypse apparait comme une roche de résistance faible à moyenne en fonction des classifications utilisées comme montré par Giambastiani (2005) (Figure 51). En effet, les résultats obtenus par cet auteur mettent en évidence la diversité de comportement en résistance de plusieurs faciès de gypse argentin. Des résistances de moins de 10 MPa à près de 50 MPa sont obtenues ainsi que des modules élastiques de quelques giga pascals à presque 50 GPa. Ces coefficients sont des paramètres nécessaires à une grande majorité de modèles de calculs comme le logiciel Disroc qui a été utilisé dans ce travail.

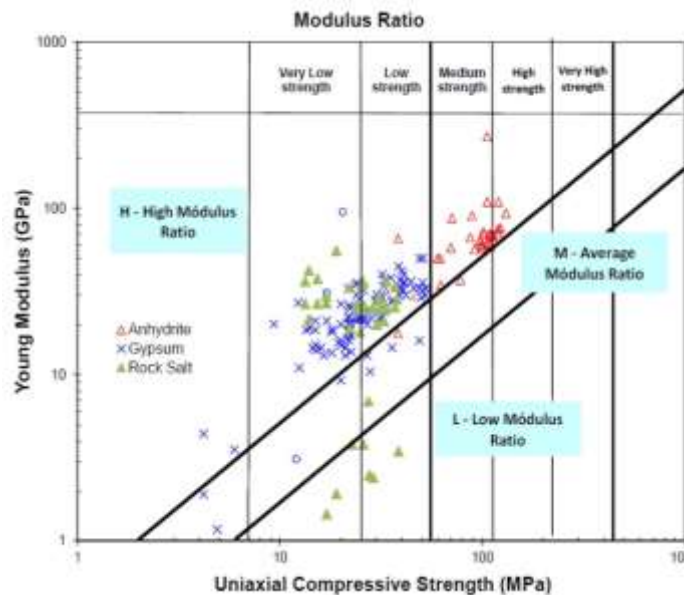


Figure 51 Relation entre module d'élasticité et résistance en compression (Giambastiani, 2005)

### III. Effet de la granulométrie sur la résistance mécanique

Comme décrit au début de ce chapitre, le gypse est une roche créée à partir de la précipitation d'une saumure. Plusieurs paramètres comme le volume de saumure, la composition et la durée de nucléation permettant la croissance et la multiplication des cristaux. Ces cristaux peuvent être micrométriques à centimétriques. Les dimensions des cristaux peuvent également avoir un effet sur la résistance mécanique comme décrit par (Moiriat, 2001) (Tableau 11).

Caselle et al. (2019b) s'intéressent quant à eux à la relation entre des paramètres granulométriques quantitatifs soit D10, D50 et UC (coefficient d'uniformité) et la résistance mécanique des gypses. Ces paramètres déterminés à partir de la courbe granulométrique correspondent au diamètre pour 10% et 50% des grains comptabilisés. Le coefficient d'uniformité est le rapport entre le D60 et le D10, et il permet d'estimer l'uniformité de l'échantillon (Figure 52).

Tableau 11. Propriétés mécaniques du gypse en fonction de sa granulométrie. (Moiriat, 2001). Rc : résistance en compression, Rtb (résistance à l'essai brésilien, Vp : vitesse du son, n : porosité, mv : densité (kg/m<sup>3</sup>)

faciès	Taille (mm)	Rc (MPa)	Rtb (MPa)	indice fragilité (Rc/Rtb)	Vp (m/s)	n (%)	Mv (g/cm <sup>3</sup> )
microcristallin	< 0,01	25.5	2.9	9.1	4431	4	2.24
macrocristallin	[0,01 ; 0,1]	25.6	2.9	8.8	4282	5.3	2.21
grenu	[0,1 ; 1]	16.2	1.76	9.5	3594	7.8	2.15
macro grenu	> 1	7.6	1.16	8.1	2433	12.1	2.05

Ainsi, le développement de grains de plus importante dimension favorise le développement de la porosité et diminue la résistance mécanique globale du matériau. Il peut toutefois être noté que l'indice de fragilité correspondant à Rc/Rtb (soit le rapport de la compression sur la traction) reste équivalent et que donc le solide lui-même n'est pas impactée.

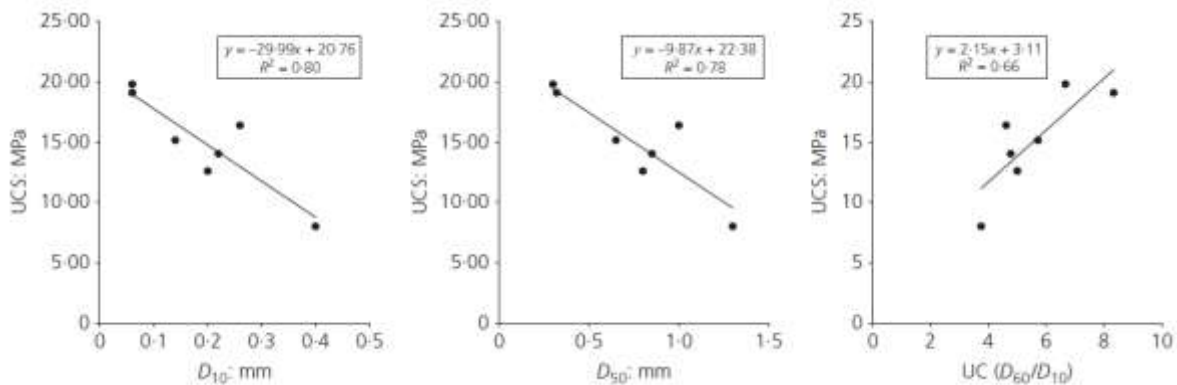


Figure 52 Relation entre la résistance mécanique et les paramètres granulométriques. D'après (Caselle et al., 2019)

#### IV. Perméabilité du gypse

La littérature est relativement pauvre concernant des essais de perméabilité sur le gypse (Tableau 12). Ce manque de données peut provenir de la faible perméabilité du gypse (Figure 53). Il est d'ailleurs à noter que la perméabilité du gypse semble relativement homogène mais n'a été mesurée dans les précédentes recherches que sur des roches gypseuses de faible porosité.

Tableau 12 : Perméabilité du gypse dans la littérature

Source	Lieu	Age	Porosité (%)	Perméabilité (m <sup>2</sup> )	Perméabilité (m/s)	Méthode (air/gaz)
(Wu et al., 2021)	Chine	Eocène	3,1	$5,10^{-17} - 4,2.10^{-19}$	$5,10^{-11} - 4,2.10^{-13}$	eau
Auvray (2003)	Jura	Trias	1 à 5	$10^{-17} - 10^{-19}$	$10^{-11} - 10^{-13}$	air
(Bell, 1994)	GB	Trias	3,4	$3,7.10^{-13} - 4,8.10^{-14}$	$3,7.10^{-7} - 4,8.10^{-8}$	//
(Charles et al., 1993)	//	//	4,6	$6,9. 10^{-15}$	$6,9. 10^{-9}$	//

Bien que la perméabilité ne soit pas uniquement fonction de la porosité, elle est un des paramètres qui gouverne la perméabilité (Bousquie, 1979). La contrainte exercée peut



également avoir un impact (Wu et al., 2021) car l'application d'une contrainte peut réduire la perméabilité en fermant la porosité. À partir d'un certain seuil, la rupture ductile du matériau génère un phénomène de glissement induisant de nouveau chemin d'écoulement. Ainsi la perméabilité augmente de nouveau.

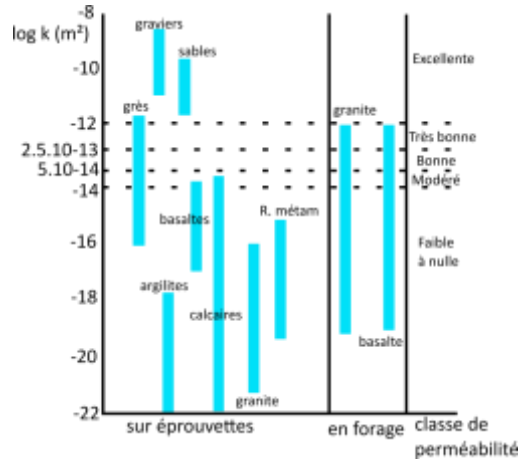


Figure 53 Perméabilité des roches et classification de la perméabilité (Géraud, 2000)

### V. Étude de l'altération du gypse

Une majorité des études sur la dégradation du gypse s'inscrivent dans le cas du suivi de pilier de carrière compte tenu de l'exploitation importante du gypse en milieu souterrain. Ce contexte, ainsi que les faibles valeurs de perméabilité du gypse pousse à mettre en place des expériences en laboratoire de dégradations d'éprouvettes, principalement en termes de dissolution de leurs surfaces. Ainsi les expérimentations peuvent se faire par simple immersion (Zhu et al., 2019), avec ou sans écoulement et renouvellement de fluide (Bertolus et al., 2017; Castellanza Riccardo et al., 2010). Dans le cas de la carrière de gypse abandonnée de « Carale » en Italie, cette carrière est soumise à une arrivée d'eau via le percement du toit imperméable. Ainsi la nappe sus jacente s'y déverse et l'a inondé progressivement. Afin de simuler la dégradation des piliers de la carrière par l'écoulement mis en place, Castellanza Riccardo et al. (2010) appliquent une charge constante sur des éprouvettes afin de représenter un pilier en place. Ces piliers sont ensuite soumis à des écoulements d'eau autour d'eux pour simuler l'inondation des galeries et le renouvellement de l'eau. La dégradation du matériau est mesurée à partir de la réduction de la résistance des éprouvettes testées (Figure 54a) en compression et à partir du déplacement généré lors de l'écrasement des éprouvettes sous contrainte (Figure 54b). Les 3 phases de régime décrits par Auvray, (2003) sont également présentes.

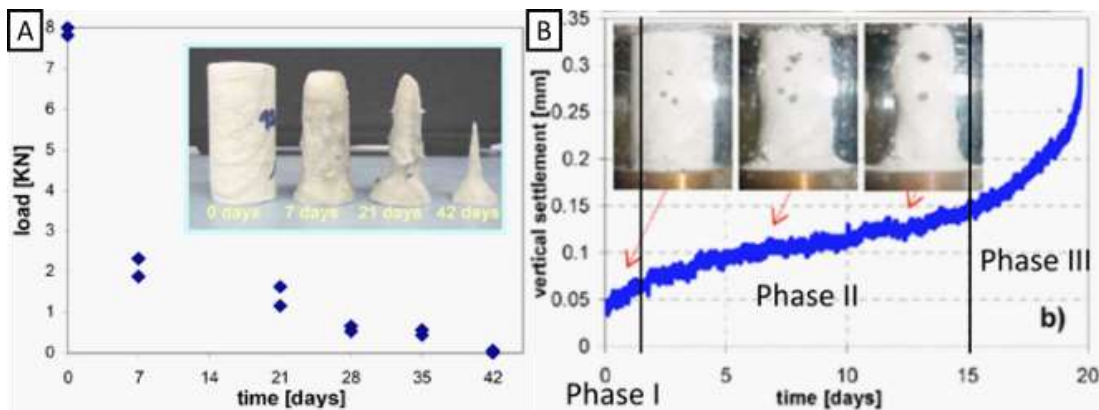


Figure 54 Dégradation de la résistance en compression et déplacement sous contrainte d'éprouvettes de gypse. D'après(Castellanza Riccardo et al., 2010)

## CHAPITRE 1 : ETAT DE L'ART

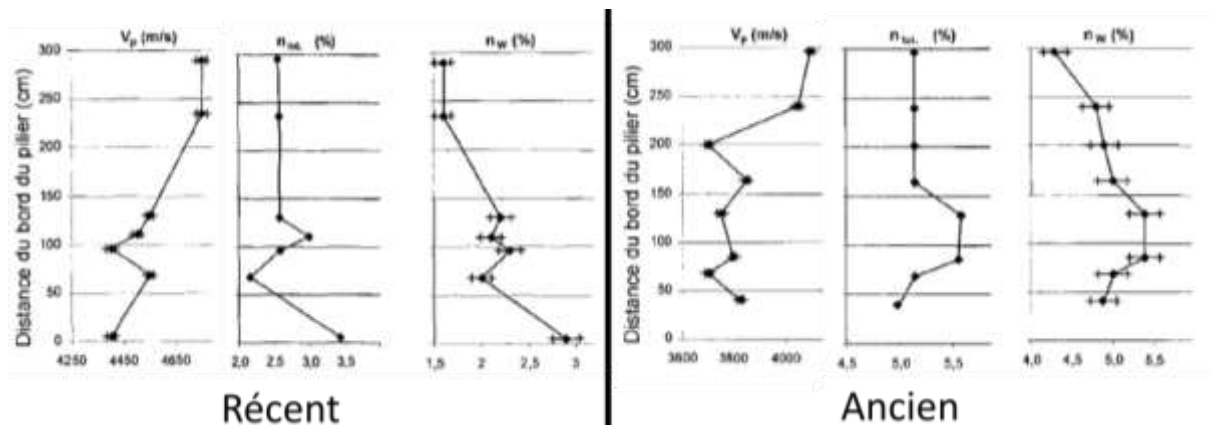
Dans sa thèse, Auvray, 2003 compare les propriétés poromécaniques de gypses dans différents quartiers de deux carrières souterraines avec des gypses de différents âges afin de mettre en évidence leur mode de dégradation. Au sein d'un pilier, des gradients d'altération sont observés via des mesures de la surface du pilier soumis à des altérations jusqu'au cœur du pilier qui est plus préservé (Tableau 13).

Le cas de la carrière de Livry-Gargan lui apparaît comme contradictoire. En effet, on observe une augmentation de la porosité (un doublement sur 50 ans) avec une augmentation des propriétés mécaniques alors que ces dernières devraient diminuer avec l'altération.

**Tableau 13** Caractérisation des gypses dans différentes zones exploitées de deux carrières. (Auvray, 2003)

Carrière	Date de début d'exploitation	densité g.cm <sup>3</sup>		porosité totale (Nt)		Saturation (%)		Vitesse du son (m/s)		Module d'élasticité (GPa)		Coefficient de Poisson	
		moy	écart type	moy	écart type	moy	écart type	moy	écart type	moy	écart type	moy	écart type
Livry-Gargan	2000	2.22	0.01	6.1	0.4	51	3	2961	250	17.5	3.3	0.24	0.0
	1950	2.09	0.03	10.3	1.1	52	6	3313	50	21.5	0.6	0.25	0.0
	1900	2.06	0.02	11.6	0.7	12	1	3682	50	25.4	0.8	0.27	0.0
Grozon	2000	2.29	0.02	2.3	1	17.3	5	4750	200	35	1.9	0.33	0.0
	1970	2.33	0.01	1.2	0.4	31.9	9	4968	50	37.8	0.3	0.34	0.0
	1920	2.3	0.03	1.4	1.3	31.3	21	4929	100	37.5	1.2	0.33	0.0

L'observation de l'évolution en profondeur des piliers est quant à elle plus cohérente. Dans cette configuration, Auvray (2003) observe la réduction de la porosité et l'augmentation des propriétés mécaniques. La porosité est plus développée en surface des piliers qu'au cœur de la structure (Figure 55). Auvray (2003) met ainsi en évidence un gradient de dissolution. L'eau nécessaire à ce phénomène provient de l'humidité ambiante.



**Figure 55** Mise en évidence de gradient d'altération dans les piliers de la carrière de Livry-Gargan selon l'âge d'exploitation. D'après (Auvray, 2003)

La commune de Roquevaire dans les Bouches du Rhône (13) possède quant à elle une importante carrière souterraine abandonnée avec des circulations active d'eau pénétrant pas la fissuration du massif. Le gypse triasique présent a subi d'importants phénomènes tectoniques à l'origine de nombreuses hétérogénéités. Or, le site est régulièrement soumis aux

effondrements, Afin d'étudier la vitesse d'altération des piliers, une importante campagne a été menée *in situ*. Des éprouvettes furent soumises à une dissolution à partir de l'eau de la carrière. Un système de bac a été mis en place et des éprouvettes sont immergées pour simuler la sollicitation subie par les piliers. Le suivi de la dégradation des propriétés mécaniques a été réalisé sur des périodes de plusieurs mois et la dissolution montre des variations sur les éprouvettes caractérisée par de l'hétérogénéité associée à la nature triasique du gypse et son contexte de formation (Figure 56).



Figure 56 Évolution des éprouvettes soumises à la dissolution dans la carrière de Roquevaire. (Bertolus et al., 2017)

Le suivi de la résistance en compression simple ( $R_c$ ) des éprouvettes permet de suivre l'effet de la dissolution sur le matériau. Or l'étude n'a pas pris en compte la porosité et la possibilité de gradient interne aux éprouvettes. Cette porosité devant être faible dans les piliers de par le contexte orogénique et la contrainte sur le pilier qui tend à fermer la porosité. La réduction de la résistance en compression à partir de différents blocs montrent néanmoins une évolution commune avec une réduction de 0,7 MPa / semaine (Bertolus et al., 2017) pour une perte de masse de 10 à 17% par mois sur des éprouvettes de diamètres 50.

D'autres essais sur la perte de masse en fonction des variations de nappe ont permis de mettre en évidence le phénomène de « diabolos ». La nappe sera saturée dans sa partie inférieure et la dissolution est ainsi plus active dans la partie haute qui est dans le même temps soumise à des variations de hauteur.

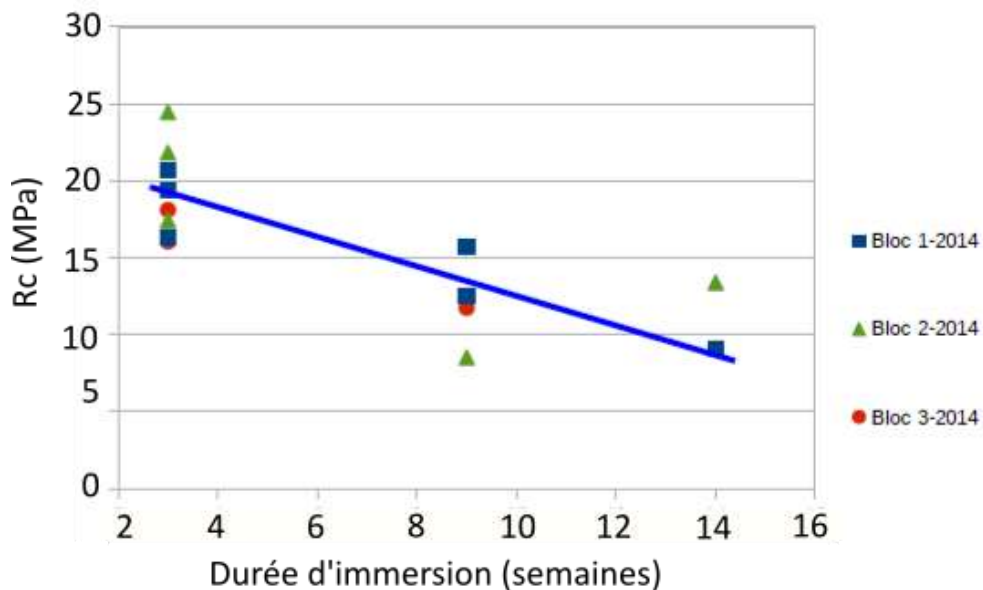


Figure 57 Réduction de la résistance à la compression avec la dissolution et de la saturation. (Bertolus et al., 2017)

## CHAPITRE 1 : ETAT DE L'ART

Fabre et Dayre (1982) utilisent un perméamètre radial pour provoquer la dissolution d'éprouvettes de gypse saccharoïde. Ils notent la réduction rapide de la saturation de l'eau percolée (en 1 heure) et l'augmentation du débit (bien que minime). Les auteurs calculent ainsi un taux de dissolution de l'ordre de  $2,7 \cdot 10^{-4}$  g/L, ce qui représente environ 6 cm de récession par an, soit des valeurs très fortes au regard des valeurs estimées dans la littérature (Figure 58) avec des taux de dissolution de quelques mm/an. Une explication peut être avancée par le fait qu'il s'agit d'une expérience de laboratoire utilisant de l'eau pure, les valeurs de la figure étant des mesures *in situ*.

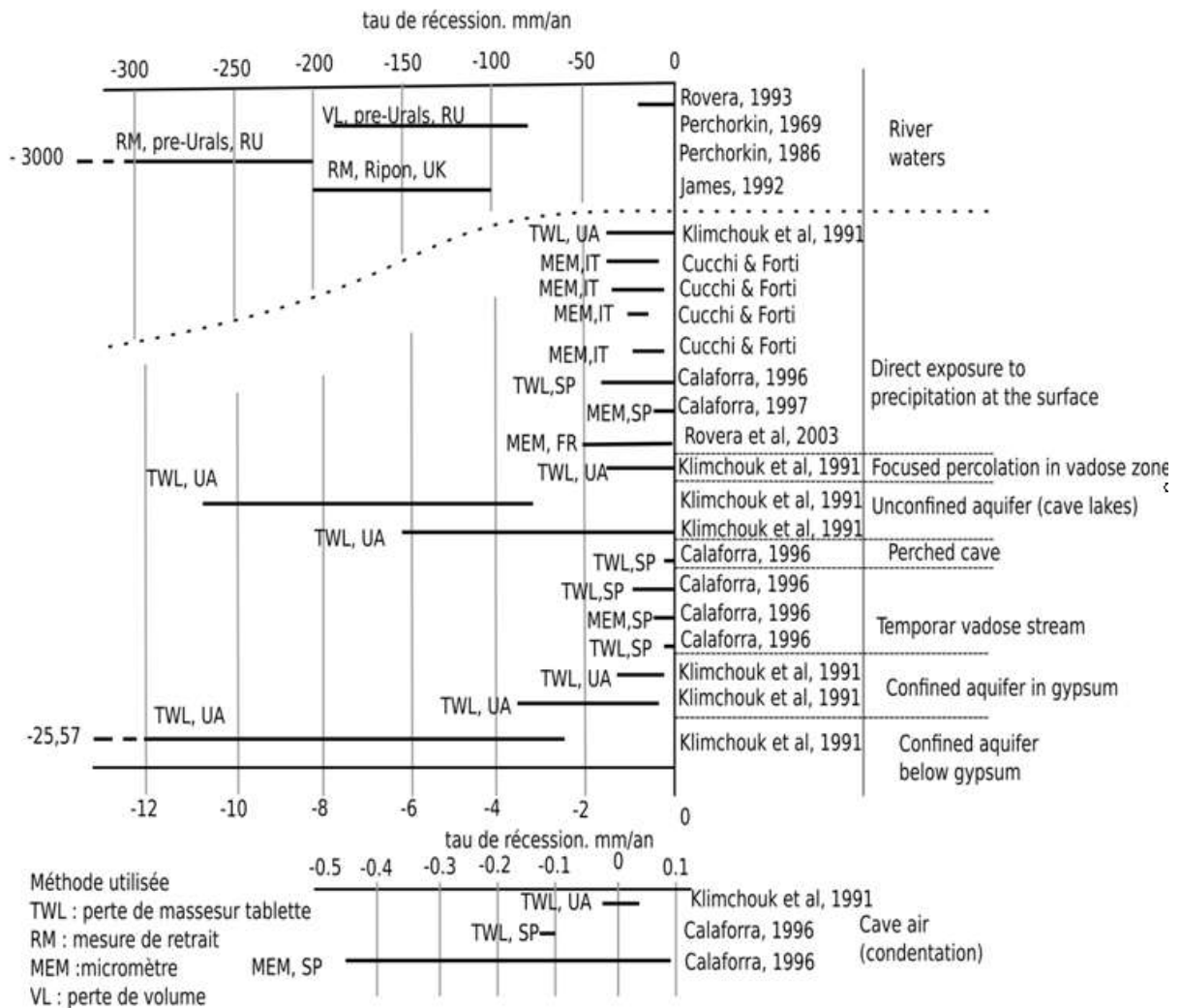


Figure 58 Diagramme des taux de récession mesuré expérimentalement en fonction des méthodes et localisation des essais. Modifié d'après (Klimchouk et al., 1996c).

**Synthèse :** Cette revue bibliographique a mis en évidence plusieurs aspects du gypse ainsi que certaines de ses propriétés. Tout d'abord le gypse est une roche de résistance mécanique faible à modérée (de quelques MPa à environ 40 MPa en compression). Sa porosité est sensible à l'évolution du massif qui le contient avec des phénomènes de compaction pouvant réduire la porosité et favoriser une augmentation de la résistance mécanique (Fabre and Dayre, 1982; Klimchouk, 1996c). La résistance mécanique est également dépendante de plusieurs facteurs comme la granulométrie (Caselle et al., 2019a). Cette résistance permet de définir des modules mécaniques (principalement le module d'élasticité et le coefficient de Poisson) utiles au développement de modèles numériques incorporant les lois de comportement. Ces deux paramètres sont fondamentaux pour envisager des travaux de modélisations ou la détermination des modèles de comportement (Giambastiani, 2005).

La porosité du gypse possédant plusieurs faciès peut aller de 0,1 à plus de 20%. Ces valeurs montrent la nécessité de détailler finement la structure porale du matériau, qui est peu décrite dans la littérature. Ce manque provient en partie de la faible perméabilité du gypse donnant l'impression d'un matériau sans écoulement possible. Cet a priori fait partie des critères faisant du gypse une roche susceptible de stocker des déchets nucléaires ou du CO<sub>2</sub> (Nguyen and Selvadurdi 1996; Thoraval and al. 2015; Khaledi and al. 2016; Li et al. 2020; Meng et al. 2022). Cependant tenir compte seulement de la porosité du gypse apparaît comme insuffisant car les propriétés hydrauliques dépendent aussi, par la tortuosité du réseau de pores, de la connectivité de ce réseau et des dimensions des pores (famille de pores).

La plupart des travaux sur le gypse dans la littérature s'inscrivent dans un contexte de soutènement de galerie (carrière, stockage) et considèrent presque uniquement l'interface galerie/solide comme lieu d'altération. La présence d'un gradient d'altération du matériau gypseux est peu prise en compte. Ainsi la mise en évidence d'une altération de l'extérieur vers le coeur dans les piliers de carrières souterraine de gypse constitue un élément important mais rarement décrit dans la littérature. La réduction des propriétés mécaniques provient en effet à la fois d'un gradient d'altération du matériau par dissolution qui s'additionne à la régression de surface du matériau.

### **D. État de l'art sur les modèles HMC**

Les modèles numériques sont maintenant couramment utilisés dans de nombreux domaines ou pour représenter différents processus :

- stockage de déchets radioactifs, de gaz (Coarita-Tintaya et al., 2023; Grgic et al., 2021),
- exploitation pétrolière ((Meer and Spiers, 1999),
- karstification (Golfier, 2001; Laouafa et al., 2021),
- qualité des eaux souterraines (Guo et al., 2015; Pan et al., 2016),
- érosion chimique des roches (Wu et al., 2013; Laouafa et al., 2019; Zakharova et al., 2007; Alewell et al., 2015; Maurin et al., 2005),
- endommagement par précipitation saline, (Beck, 2006; Ha, 2012).

Ils permettent ainsi de faciliter les calculs pour le dimensionnement de fondation, pour l'évaluation de la stabilité de versant, ou de représenter les écoulements dans les milieux poreux ... avec différents couplages possibles en fonction du problème analysé (Figure 59).

Cette partie vise à dresser un bilan des connaissances sur les modèles numériques Hydro-Méca-Chimiques (HMC) avec ou sans couplage en éléments finis. L'effet de la température

sur la dissolution, plus particulièrement dans le cas du gypse a été étudié au niveau expérimental (voir ci avant partie B.3), mais sera peu abordé.

Tout d'abord les modèles hydro-mécaniques (HM) reposant sur les grands principes de la poromécanique seront présentés. Il peut toutefois être énoncé ici que l'effet de la mécanique sur l'aspect chimique aura un rôle mineur par rapport à l'effet de la chimie sur la mécanique (Ha, 2012). En effet, la chimie avec les réactions de dissolution-précipitation a un impact plus important que la mécanique sur les paramètres contrôlant ces processus. Il peut toutefois être cité la dissolution sous contrainte comme cas existant où la mécanique intervient de manière efficace sur la chimie (Ha, 2012; Diederik and Simunek, 2005).

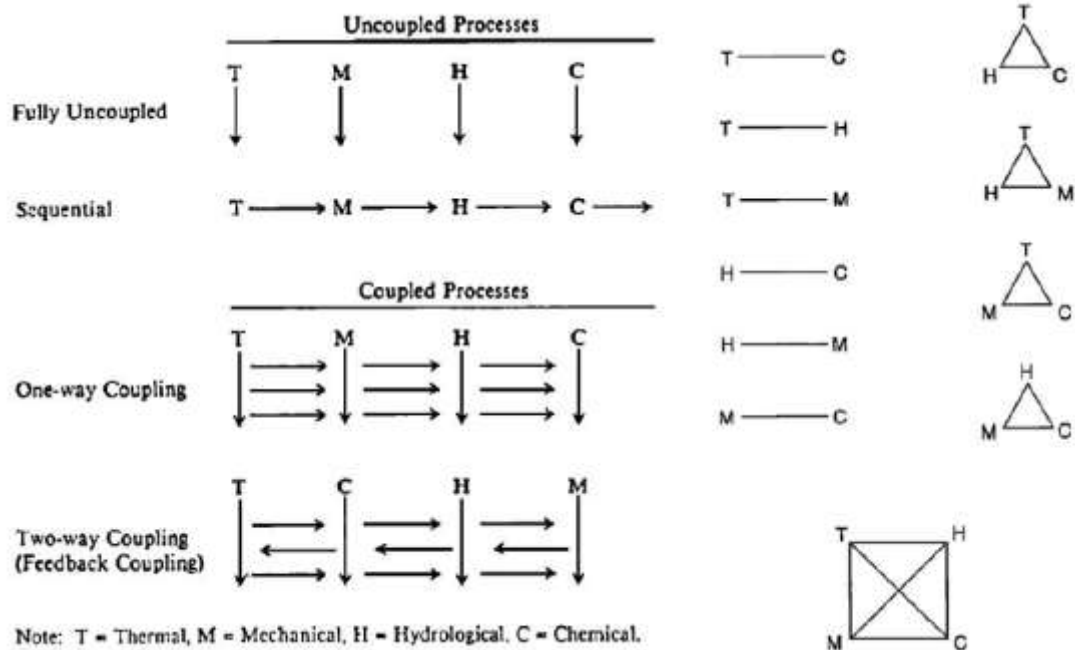


Figure 59 Diagramme des processus de dégradation des géomatériaux et couplages entre processus. (Tsang, 1991)

Le rôle de la composante hydraulique sera quant à lui fondamental tant pour son rôle dans l'écoulement que dans la pression du fluide, aussi bien au niveau mécanique que du point de vue chimique. L'eau étant eau vecteur de réactions chimiques, phénomène de transfert de masse/matière par advection, dispersion, diffusion.

Enfin quelques exemples de couplages HMC portant ou non sur le gypse seront abordés dans cette partie.

## I. Modélisation des milieux poreux

### *Introduction*

Les géomatériaux sont des matériaux hétérogènes constitués d'une phase solide et d'une phase fluide. La modélisation de ces ensembles nécessite une phase d'homogénéisation. Ce milieu homogène adapté à l'échelle et à l'objectif des calculs menés, l'étude d'une éprouvette ou d'un ouvrage ne nécessitant pas la même approche. Les calculs numériques reposent pour l'essentiel sur des simplifications et ces dernières varient en fonction des objectifs. Chaque aspect nécessitant un ensemble de calcul complexe à lui seul, le couplage demande donc de faire des choix (Ouraga and Laouafa, 2020).

Il existe quatre échelles de modélisation en fonction de ce qui est étudié en géologie (Figure 60 (Ouraga and Laouafa, 2020; Guo et al., 2016; Ha, 2012) . Il s'agit des échelles :

- microscopiques : échelle de la réaction et des éléments granulaires,
- mésoscopique : échelle de l'éprouvette,
- macroscopique : variation de faciès,
- mégascopique : un massif.

Les changements d'échelles sont possibles à condition d'utiliser des méthodes appropriées et de respecter le volume élémentaire représentatif (VER) nécessaire. Dans l'établissement de modèle numérique, la première étape consiste à déterminer le Volume Élémentaire Représentatif (VER). Il s'agit du volume minimal permettant une représentativité d'une mesure (Ngoc Bien, 2010; Ha, 2012). Il nécessite de respecter 3 longueurs caractéristiques :

- $l$  la taille du VER
- $d$  la taille des hétérogénéités
- $D$  la taille de la structure hétérogène)

Définissant les conditions suivantes :

- un milieu continu ( $l \ll D$ )
- l'utilisation d'une loi homogène ( $D \ll l$ )

Cette partie vise à décrire de manière synthétique les principales lois et caractéristiques des milieux poromécaniques à l'échelle macroscopique et de présenter quelques exemples de modèles existants prenant en compte la dissolution.

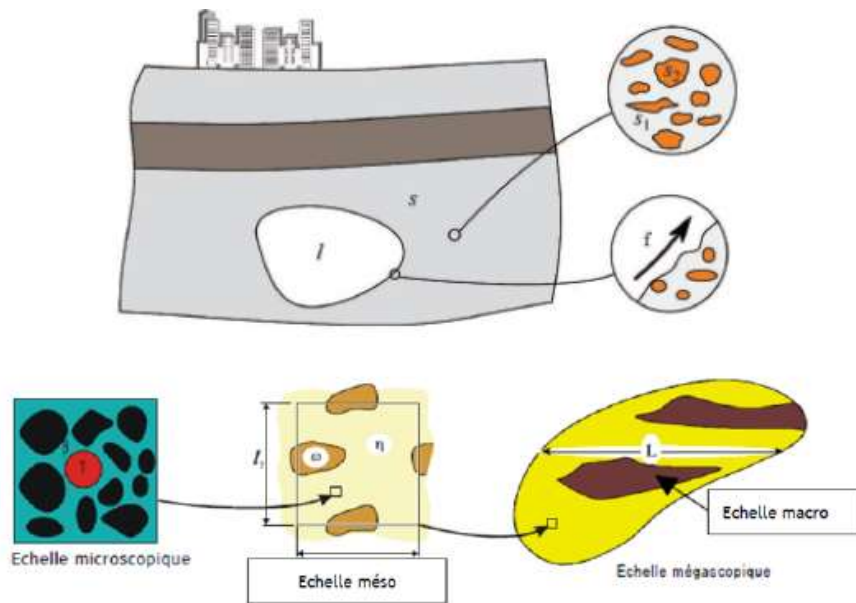


Figure 60 Illustration des différentes échelles de modélisation en modélisation.(Guo et al., 2016)

### 1) Généralités sur les milieux poreux

La théorie des milieux continus en poromécanique est une des premières théories élaborées pour analyser les champs de déformation des solides élastiques et prendre en compte l'écoulement au niveau microscopique. Elle est basée sur l'équation de Navier-Stokes (Coussy, 2010). Les travaux de Navier-Stokes sont adaptés à l'échelle microscopique et considèrent l'écoulement comme un flux continu. Ces travaux sont valables pour l'hypothèse de petites déformations et n'intègrent pas le principe de pression partielle permettant d'établir les lois régissant un écoulement macroscopique dans un solide. Ces points sont développés ultérieurement par plusieurs auteurs, comme Therzaghi, Darcy...(Coussy, 2004). L'échelle macroscopique est également l'une des méthodes plus communes pour la modélisation d'un écoulement à l'échelle poral. C'est cette théorie qui est développée ci-dessous.

## 2) Milieu poreux continu à l'échelle macroscopique

Cette partie s'intéresse aux méthodes macroscopique et microscopique. La méthode microscopique qui implique de différencier la phase solide ( $\Omega_s$ ) et la phase de fluide ( $\Omega_p$ ) (Ngoc Bien, 2010) n'est pas investiguée de manière approfondie ici. En effet, l'approche microscopique permet de suivre de manière fine et précise les phénomènes de dissolution (effet de la géométrie ...), mais demande des maillages fins qui alourdissent le calcul et rendent complexe leur mise en œuvre pour des volumes macroscopiques (Ouraga and Laouafa, 2020; Ha, 2012). Les changements d'échelles (principalement du mode microscopique vers l'échelle macroscopique) sont réalisés via de nombreuses méthodes d'homogénéisation. Elles reposent sur le principe que les propriétés physiques du matériau restent les mêmes, une fois que l'unité du système est suffisamment grande (Le Maout, 2020). Il est cité comme exemple de méthode de changement d'échelle la méthode de la moyenne volumique (Brenner and Stewartson, 1997; Mauri, 1991, p.199; Coussy, 2004; Ngoc Bien, 2010; Ouraga and Laouafa, 2020).

L'approche macroscopique considère de manière confondue la phase solide (le squelette) et la porosité où va circuler un fluide (air ou liquide), tel que (éq 1.D.1) :

$$\Omega = \Omega_s + \Omega_p \quad (\text{éq 1.D.1})$$

Le Volume Élémentaire Représentatif (VER) est donc une superposition des deux ensembles (multiphasiques) dans le maillage qui est considéré homogène et continu (Coussy, 2004; Ha, 2012). La phase de vide peut ensuite se diviser en fonction de sa saturation en air, vapeur et liquide. Dans ce travail, il est utilisé le logiciel Disroc (Fracsima, 2016) qui utilise une approche macroscopique. Aussi la suite de cet état de l'art mettra en avant ce type de modèle. La description de l'évolution des conditions s'effectue à partir des équations aux dérivés partielles (EDP) (Ngoc Bien, 2010; Ouraga and Laouafa, 2020). L'avantage de cette approche est de pouvoir réaliser des simulations sur des éléments de la taille de l'éprouvette au massif (décamétrique), ce qui facilite la transposition des paramètres expérimentaux à des cas d'étude géotechnique. L'approche macroscopique ne permet pas en revanche de suivre de manière fine les échanges à l'interface solide-liquide. Elle est en effet développée initialement pour le suivi dispersif d'après ces premiers auteurs (Taylor, 1953, 1954; Aris and Taylor, 1956).

## 3) Notions de porosité

L'étude du milieu mécanique seul s'effectue comme énoncé dans la partie précédente à partir de la relation entre contrainte et déformation des matériaux. L'ajout du milieu poreux au problème conduit à intégrer à ces tenseurs la porosité ( $\Phi$ ) et sa variabilité, ainsi que la composante de « pression de fluide » qui lui est associé (Pouya, 2020). La porosité est définie comme le volume de vide ( $V_v$ ) au sein d'un volume de matériau non déformé ( $V_0$ ) donné tel que (éq 1.D.2) :

$$\Phi = \frac{V_v}{V_0} \quad (\text{Eq1.D.2})$$

Il s'agit ici de la définition lagrangienne à distinguer de la vision eulérienne (éq 1.D.3). La différence entre ces deux approches est que l'approche lagrangienne consiste à suivre chaque élément tandis que l'approche eulérienne consiste à suivre le volume dans son ensemble (Figure 61). Ainsi, l'approche eulérienne s'attache à suivre la déformation du volume sous la contrainte ( $V_v$ ) tandis que l'approche lagrangienne estime le volume constant. La différence est minime et souvent jugée négligeable pour de petites déformations (Pouya, 2020; Ha, 2012).



$$\Phi = \frac{V_p}{V_t} \quad (\text{Eq1.D.3})$$

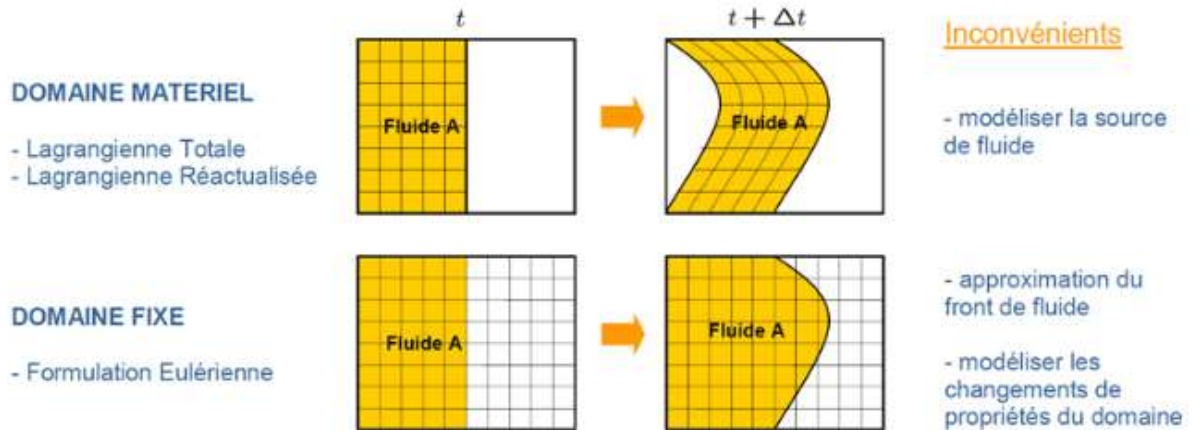


Figure 61 Illustration des approches lagrangienne et eulérienne en modélisation (Ouraga and Laouafa, 2020)

La tortuosité ( $\tau$ ) est le paramètre permettant de prendre en compte l'aspect non linéaire de la porosité. Elle correspond au rapport entre la longueur moyenne des pores et la distance linéaire de ces plans dans un axe. Elle est décrite (éq 1.D.4) comme le rapport entre la distance réellement parcourue (L) et la distance linéaire entre deux points (D)

$$\tau = \frac{L}{D} \quad (\text{éq 1.D.4})$$

Dans les milieux poreux, elle permet d'attribuer à la porosité un facteur de structure (f) permettant de retranscrire l'effet de la tortuosité (éq 1.D.5). (Le Maout, 2020)

$$f = \frac{\tau}{\Phi} \quad (\text{éq1.D.5})$$

#### 4) Principe de contrainte effective

La contrainte effective ( $\sigma'$ ) repose sur le principe que lorsqu'une contrainte est exercée dans un volume poreux, la déformation et la résistance du matériau sont impactées par la présence d'un fluide dans la porosité. Cette contrainte effective est proposée par (Terzaghi, 1934) dans le cadre de la mécanique des sols. Pour un milieu saturé, la contrainte est ainsi reprise par le squelette mais aussi pour partie par le fluide, elle s'exprime telle que (éq1.D.6):

$$\sigma' = \sigma + p^f I \quad (\text{éq1.D.6})$$

Il faut noter que dans cette écriture les contraintes de compression sont comptées négatives. Dans le cas classique d'une compression, la contrainte tend à comprimer le volume, tandis que la pression de fluide va chercher à sortir du volume. Ce principe sert à décrire la déformation du milieu poreux sous l'excès de contrainte vis-à-vis de la pression interstitielle (Coussy, 2010). La contrainte effective est un élément de base des couplages hydromécaniques (Ha, 2012; Pouya, 2020). (Biot 1941, 1955, 1972) intègre à l'équation précédente un coefficient de Biot, noté b. Ce coefficient se définit par l'équation.1.D.7. Ce coefficient permet de définir dans quelle proportion la contrainte effective s'oppose à la déformation élastique (Alam et al., 2010; Eslami, 2010).

$$b = 1 - \frac{K_p}{K_s} \quad (\text{éq1.D.7})$$

Avec  $K_s$ , le module de compressibilité du solide sans porosité et  $K_p$ , le module de compressibilité de la roche poreuse.  $K$  est donc toujours inférieur ou égal à  $K_s$ , soit  $b \leq 1$ . Dans le cas où b est égal à 1, alors l'équation de Biot est équivalente à Therzaghi et le

squelette est déformable et incompressible. L'extension de la contrainte effective à des cas de sols sous saturés fut introduit dans les années 1950 par (Bishop 1959) mais sera pas développée ici.

Il est possible de définir  $b$  (éq1.D.8) à partir de la porosité en considérant l'expression de  $K_0$  ci-dessous (éq1.D.9) (Bemer, E. et al., 2004).

$$b = \frac{\Phi_0}{\Phi_0 + (1 - \Phi_0) \frac{K_s}{K_c}} \quad (\text{éq1.D.8})$$

$$K_0 = \frac{(1 - \Phi_0) K_s}{1 - \Phi_0 + \Phi_0 \frac{K_s}{K_c}} \quad (\text{éq1.D.9})$$

Avec  $K_0$  le module de compressibilité drainé. Toutefois, le squelette n'est pas le seul à se déformer sous la contrainte. La déformation volumique du fluide est également déterminable suivant le module de Biot ( $M$ ) (éq 1.D.10) (Bemer, E. et al., 2004).

$$\frac{1}{M} = \frac{b - \Phi_0}{K_s} + \frac{\Phi_0}{K_{fl}} = \frac{K_{fl}}{\Phi_0} \quad (\text{éq1.10})$$

Avec  $K_{fl}$ , le module de compressibilité du fluide et  $\Phi_0$ , la porosité initiale. Ces deux paramètres permettent ainsi d'intégrer l'évolution de la pression de pore ( $p_p$ ) (éq1.D.11) et éq (éq1.12) se déformant avec la contrainte mécanique et la dégradation du matériau (Figure 62).

$$\partial \sigma = \left( K_d - \frac{2G}{3} \right) \partial \varepsilon_v + 2G \partial \varepsilon - b dp_p \quad (\text{éq1.D.11})$$

$$\frac{dp_p}{M} = -b \partial \varepsilon_v + \frac{\partial m}{\rho_{fl}} \quad (\text{éq1.D.12})$$

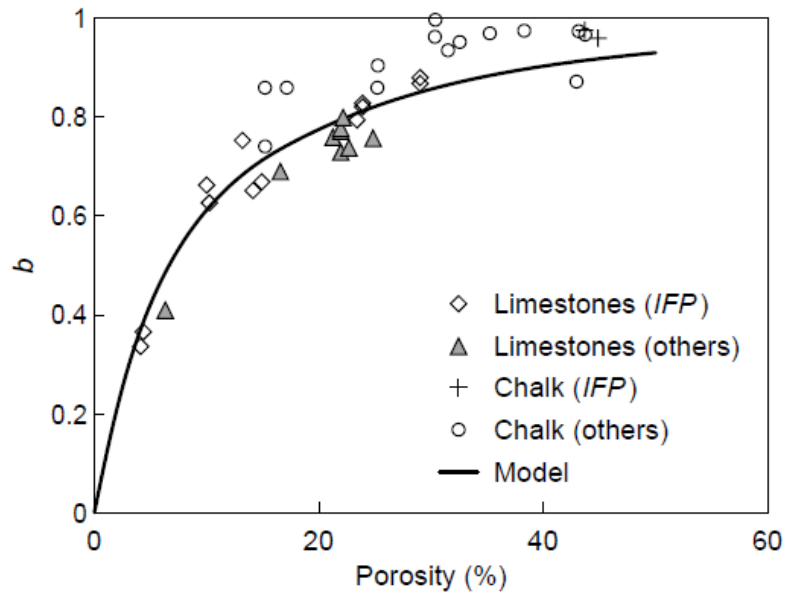


Figure 62 relation entre le coefficient de Biot et la porosité (Bemer, E. et al., 2004)

## II. Modélisation d'écoulement monophasique

Dans cette partie, il est développé des éléments généraux sur les principes régissant les écoulements dans les milieux poreux (principe thermodynamique, loi de conservation...) aux niveaux microscopiques et macroscopiques. Ces éléments sont aux principes fondamentaux des logiciels de modélisations élément finis. Leurs compréhensions est donc un prérequis pour envisager le développement d'un système d'équation pour modéliser la dissolution du gypse et son évolution poromécanique.



### III. Loi d'écoulement à échelle microscopique et macroscopique

#### 1) *Loi d'écoulement monophasique à l'échelle du pore*

Dans le cas d'un squelette solide indéformable (s), la loi de conservation de la masse d'un fluide (w) dans le milieu poreux s'écrit (éq 1.D.16A) :

$$\frac{\partial \rho_\alpha}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_\alpha \mathbf{v}_\alpha) = 0 \text{ pour } \alpha \in \{w, s\} \quad (\text{éq1.D.16A})$$

En faisant l'hypothèse d'un solide parfaitement indéformable (éq1.D.16B) et la conservation du moment cinétique à l'échelle microscopique est (éq1.D.16C) :

$$\nabla \cdot \mathbf{v}_\alpha = 0 \text{ pour } \alpha \in \{w, s\} \quad (\text{éq1.D.16B})$$

$$\frac{\partial (\rho_\alpha \mathbf{v}_\alpha)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_\alpha \mathbf{v}_\alpha \mathbf{v}_\alpha) - \rho_\alpha \mathbf{g}_\alpha - \underline{\mathbf{t}}_\alpha = 0 \text{ pour } \alpha \in \{w, s\} \quad (\text{éq1.D.16C})$$

Avec  $v_s = 0$  pour le solide. Il est possible de simplifier l'équation 1.D.16C en 1.D.16D

$$\frac{\partial w_\alpha}{\partial t} + v_w \cdot \nabla v_w - \mathbf{g}_w - \frac{1}{\rho_w} \nabla \cdot (-p\mathbf{I} + \eta_w(\nabla \mathbf{v}_w + \nabla^t \mathbf{v}_w)) = 0 \quad (\text{éq1.D.16D})$$

Le système d'équations composé de C et B forme le système d'équation de Navier-Stokes (Le Maout, 2020; Stoter et al., 2017).

#### 2) *Loi d'écoulement monophasique à l'échelle macroscopique*

On se limite ici à la description d'un écoulement en milieu saturé en eau, configuration choisie dans le cadre du travail de thèse. Il s'agit donc d'étudier l'écoulement d'un fluide aqueux monophasique dans la porosité d'un gypse. À l'échelle macroscopique, l'écoulement de l'eau est régi par la loi de Darcy (Darcy, 1856; Ha, 2012) (éq1.D.17).

$$\underline{v}_i = k \frac{\partial P}{\partial x_i} \quad (\text{éq1.D.17})$$

Avec  $K_{\text{sat}}$  est la conductivité hydraulique (m/s),  $k$  la perméabilité spécifique ( $\text{m}^2$ ),  $\partial h / \partial x_i$  le gradient hydraulique,  $P$  la pression hydraulique et  $x_i$  est l'abscisse de  $i$ . Avec la relation (éq1.D.18) :

$$k = \frac{\rho^f g}{\eta} K \quad (\text{éq1.D.18}).$$

Où  $\rho$  est la masse volumique du fluide ( $\text{kg}/\text{m}^3$ ),  $\eta$  est la viscosité dynamique du fluide ( $\text{Pa}/\text{s}$ ) et  $g$  est l'accélération de la gravité ( $\text{m}/\text{s}$ ).

#### 3) *Relation porosité-perméabilité*

Il vient d'être décrit le modèle de Darcy permettant de quantifier la vitesse d'écoulement en prenant en compte la porosité pour un cas sans évolution de ces paramètres (éq 1.D.19). Plusieurs lois ont été développées afin de prendre en compte l'évolution de la porosité (dissolution, fissuration...) dans le milieu poreux, processus majeur dans le cas de formations gypseuses. La plus fréquemment rencontrée est la loi de Kozeny-Carman (éq 1.D.20).

$$k = k_0 \left( \frac{\Phi}{\Phi_0} \right)^3 \left( \frac{1-\Phi_0}{1-\Phi} \right)^2 \quad (\text{éq1.D.20}).$$

Avec  $k_0$  et  $\Phi_0$  les valeurs initiales de perméabilité et de porosité.

D'autres relations existent comme la loi de Fair-Hatch modifiée (éq 1.D.21) (Bear, 1979; Beckingham, 2017), le modèle de Verma and Pruess (1988) (éq 1.D.22) ou encore des lois de puissances (éq 1.D.23) ,dont l'exposant  $n$  est issu de résultats expérimentaux (Nogues et al., 2013; Luhmann et al., 2014; Menke et al., 2017; Al-Khulafi et al., 2017).

$$k = k_0 \left( \frac{(1-\Phi_0)^{2/3} + E_1(\Phi_f - \Phi)^{2/3}}{(1-\Phi)^{2/3} + E_1(\Phi_f - \Phi)^{2/3}} \right)^2 \quad (\text{éq1.D.21}).$$

Avec  $\Phi_f$  la porosité finale après dissolution complète du minéral considéré et  $E_1$  une constante.

$$k = k_0 \left( \frac{\Phi - \Phi_c}{\Phi_0 - \Phi_c} \right)^n \quad (\text{éq1.D.22}).$$

Avec  $\Phi_c$  la porosité critique où la perméabilité vaut 0 et n un paramètre empirique. L'estimation de  $\Phi_c$  est de 0,8 à 0,9 d'après Verma et Pruess (Afanasyev and Grechko, 2023; Liu and Zhou, 2023).

$$k = k_0 \left( \frac{\Phi}{\Phi_0} \right)^n \quad (\text{éq1.D.23}).$$

Le choix de cette relation peut avoir un effet important dans l'évolution de la porosité, comme mis en évidence par (Águila et al. 2022), notamment la valeur des exposants n. La propagation du front de dissolution est déterminée pour une large part par la vitesse de renouvellement du fluide qui va déterminer la durée de dissolution mais aussi la propagation de l'altération (Figure 63).

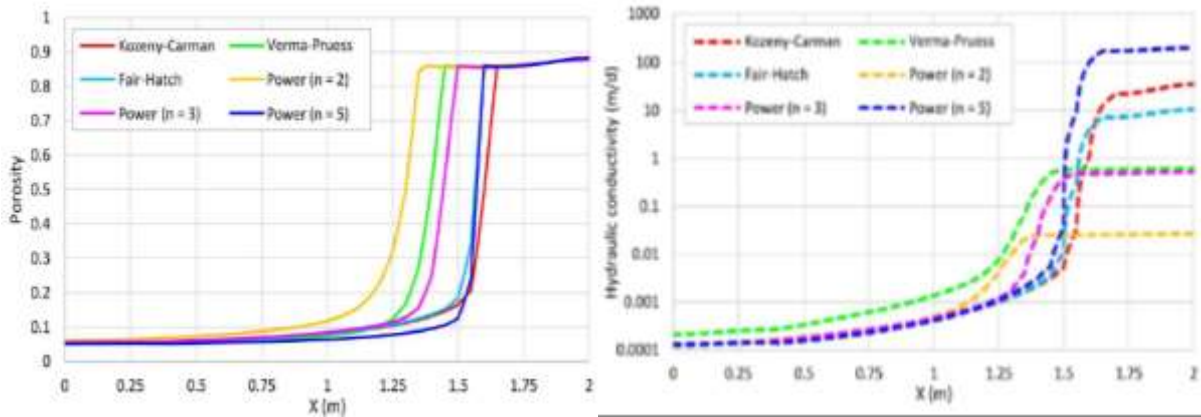
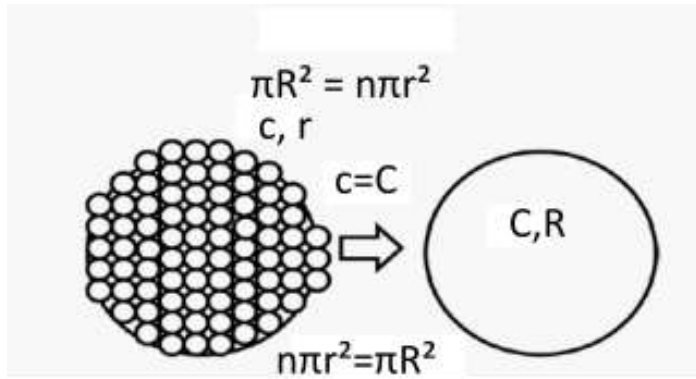


Figure 63 Évolution de la porosité (à gauche) et de la conductivité hydraulique (à droite) dans le gypse pour une simulation d'une durée de 1 000 ans pour différentes relations entre porosité et perméabilité (Águila et al. 2022).

#### 4) Exemple de génération d'un milieu poreux

Une méthode pour générer un milieu poreux de manière simple est basée sur les diamètres d'accès aux pores issus des courbes de porosimétrie par intrusion de mercure (PIM) et la genèse de conduits à géométrie simplifiée. Cette méthode basée pour partie sur des résultats expérimentaux est développée par Ha(2012) dans sa thèse sur l'altération du tuffeau.

Elle consiste en la division de la distribution des diamètres de pores en un nombre de classes n arbitraires (18 dans sa thèse). Chaque classe se voit ensuite attribuée son diamètre médian. Il est ensuite généré dans le milieu le nombre de conduits correspondants. La porosité étant importante dans son matériau ( $\Phi=49\%$ ), Ha, (2012) fusionne une partie de ces conduits en des « pipe bundle » (Figure 64). Cela afin de réduire les temps de calculs et de simplifier le modèle. Un « pipe bundle » est un regroupement de capillaires en une seule structure (de rayon R) équivalente au niveau hydraulique à la somme des rayons r des capillaires qu'il représente.



R : diamètre de pore issu de l'agglomération des pores r  
 r : diamètre de pore constitutif  
 c : constante de Kozeny d'un pore r  
 C : constante de Kozeny d'un pore R

Figure 64 Principe de pipe-bundle. (Ha, 2012)

Un des points principaux de cette méthode réside dans le choix de la géométrie des conduits de pores impactant la perméabilité. À partir de la loi de Kozeny-Carman, il est possible d'en définir l'effet pour des rayons connus (Tableau 14) sur la conductivité hydraulique. Le tableau comportant les formules permettant ces calculs est donné en Annexe 1.E.1 La géométrie au travers du coefficient de Kozeny (c) joue un rôle important dans les conditions d'écoulements (éq 1.D.24). En plus de ces géométries, l'utilisation de la loi de Poiseuille permet également de définir une approximation du coefficient de Kozeny pour une section circulaire (éq1.D.25).

$$k = \frac{\phi^3}{c^*(1-\phi)^2 S_s^2} \quad (\text{éq 1.D.24})$$

$$c = \frac{r^2}{8} \quad (\text{éq 1.D.25})$$

Où  $c^*=ct$  soit la constante de Kozeny prenant en compte la tortuosité du réseau poral (t).

Tableau 14 Conductivité hydraulique d'un conduit en fonction de sa géométrie selon Kozeny-Carman. (Ha, 2012)

Section	Circulaire	Triangle	Carrée	Rectangle
K	$\frac{\phi}{c4\pi(1-\phi)^2\tau^2} S$	$\frac{\phi}{c12\sqrt{3}(1-\phi)^2\tau^2} S$	$\frac{\phi}{c16(1-\phi)^2\tau^2} S$	$\frac{\phi}{c16(1-\phi)^2\tau^2} S$
Section	Ellipse 10	Ellipse 20	Ellipse 30	Ellipse 40
K	$\frac{\phi}{c20,2\pi(1-\phi)^2\tau^2} S$	$\frac{\phi}{c40,1\pi(1-\phi)^2\tau^2} S$	$\frac{\phi}{c60,06\pi(1-\phi)^2\tau^2} S$	$\frac{\phi}{c80,05\pi(1-\phi)^2\tau^2} S$

L'écoulement peut être schématisé par une forme géométrique tubulaire (via la loi de Poiseuille) où s'écoule le fluide considéré de manière laminaire. Cette schématisation peut être faite dans le domaine numérique (Ha, 2012) mais aussi expérimentale (Rousset-Tournier, 2001; Tomachot, 2002; Mertz, 1991) via l'équation 1.D.26.

$$v(r, z, \theta) = v(r) = -\frac{R_m^2}{4\eta} \frac{\partial p}{\partial z} \left(1 - \frac{r^2}{R^2}\right) \quad (\text{éq 1.D.26})$$

Le débit est ensuite déterminable en tout point suivant (éq 1.D.27) :

$$q = \frac{\pi r^4}{8\eta} \frac{\partial P}{L} = cS \frac{\partial h}{L} \quad (\text{éq 1.D.27})$$

Où  $v$  est la vitesse d'écoulement (m/s),  $R$  le rayon du cylindre considéré,  $L$  est la longueur du tube (m),  $c$  la conductivité hydraulique (m/s) et  $S$  la section du tube (m<sup>2</sup>) et  $q$  le débit (m<sup>3</sup>/s). Ce débit peut ensuite être rapproché d'une vitesse de Darcy suivant les travaux de Kozeny (Chapuis and Aubertin, 2003; Kozeny, 1927) (éq 1.D.28).

$$v = \gamma c \left( \frac{\partial P}{\partial x_i} \right) \left( \frac{\Phi^3}{S_s^2} \right) \quad (\text{éq 1.D.28})$$

Avec  $S_s$ , la surface spécifique (m<sup>2</sup>/masse) et  $c$  une constante géométrique valant 0,5 pour une sphère, 0,562 pour un carré et 0,597 pour un triangle équilatéral (Ha, 2012).

Il détermine ensuite à partir de la loi de Kozeny-Carman la conductivité hydraulique en fonction de la porosité et de la géométrie. Ces perméabilités permettent ainsi de définir le débit à partir de l'application de la loi de Darcy (éq 1.D.29).

$$Q = k \frac{S \Delta P}{\eta L} = K S_s \frac{\Delta h}{L} \quad (\text{éq 1.D.29})$$

Il est ainsi possible à partir des données expérimentales (notamment PIM) d'établir les paramètres nécessaires à l'établissement d'une structure de pore représentative du matériau et pouvant définir le volume  $\Omega_p$ . Conjuguant ici des paramètres microscopiques pour établir un ensemble macroscopique pertinent.

Il est à préciser que certains auteurs (Rigby et al., 2001; Rigby and Daut, 2002; Diamond, 2000) critiquent cette approche, jugeant la méthode PIM pas assez précise dans les diamètres déterminés.

### 5) Modélisation géochimique

Il existe un grand nombre de code géochimique (CHESS, THOUGHREACT...) dont l'inventaire et les spécificités ne seront pas abordés ici. Il est cité le logiciel PhreeqC, libre d'accès et qui fait référence pour le calcul du transfert de solutés réactifs dans les milieux poreux 1D (code de base) (Parkhurst and Appelo, 2013; Pötter et al., 2021; Thiéry, 2016) (Figure 65). Cette famille de codes de calcul vise à déterminer les concentrations à l'équilibre d'une solution dont l'état initial est perturbé (une seconde solution ...) à partir des principes thermodynamiques et des constantes de réactions. Des possibilités de calcul intégrant des phénomènes de transport (diffusion, advection) existent également.

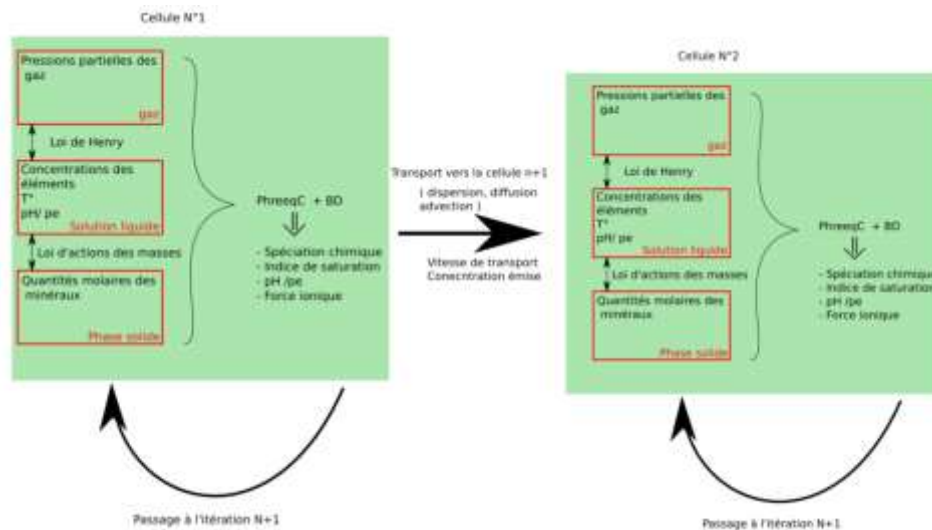


Figure 65 Modèle de cellules réactives en cascade dans le code PhreeqC - Couplage entre réactions géochimiques liquide-solide-gaz et transport de masse en 1D (Thiéry, 2016)

Les couplages Hydro-Méca-Chimiques (HMC) peuvent être utilisés pour l'étude du comportement des argiles (effet de pression osmotique) (Dominijanni and Manassero, 2012a, b; Shackelford and Scalia, 2022; Liner et al., 2018) et pour la durabilité des ouvrages géotechniques (attaque acide du béton et des pierres)(Ha, 2012; Eyssautier et al., 2016) ou la préservation des monuments historiques. L'un des principaux facteurs de la dégradation des monuments étant causé par le développement de contamination saline (halite, gypse...) (Ha, 2012; Janvier-Badosa et al., 2015, 2016).

Le principal levier permettant à la chimie d'influer sur les écoulements se fait via la pression osmotique et la loi de Fick (cas des argiles principalement). Ces forces sont le plus souvent de moindre intensité par rapport à l'effet de l'hydraulique sur la chimie. En effet, l'écoulement va renouveler le fluide dans les zones de réactions et transporter par advection les produits de réactions, entretenant ainsi les réactions.

Dans l'introduction de cette partie, il a été énoncé le rôle mineur, voire négligeable de la mécanique sur les facteurs chimiques. À l'inverse les paramètres chimiques peuvent influencer de manière importante sur la mécanique (Ha, 2012). Les mécanismes de transformations minéralogiques via la substitution de minéraux (Blanc et al., 2010; Bouchelaghem, 2010; Lerouge et al., 2011) ou encore la dissolution engendrant une augmentation de la porosité et une réduction de la résistance (Mohamad-Hussein, 2007; Zhang, 2008; Hu et al., 2022). La précipitation quant à elle peut conduire à la cicatrization de fissure (Ha, 2012; Kolditz et al., 2016; Tounsi et al., 2020).

Le développement de l'intégration des paramètres chimiques dans les modèles HMC (Hydro-Mécanique-Chimique) existant se fait le plus souvent en couplant l'un de ces logiciels à un code géo mécanique. Ce type de relation est en développement depuis plusieurs années et commence à être bien répandu dans la littérature notamment pour le stockage du CO<sub>2</sub> (André et al., 2007; Goerke et al., 2011; Yin et al., 2011; Zhang and Song, 2014; Pan et al., 2016) et des déchets radioactifs (Zheng et al., 2017; Xiaodong et al., 2011; Nguyen and Selvadurdi, 1996; Tounsi et al., 2023). Il peut être cité le couplage COMSOL/PhreeqC (Nardi et al., 2014; Guo et al., 2018) ou encore MARTHE/PhreeqC (Thiéry, 2016). La plupart des applications de ces logiciels est de suivre la diffusion d'un élément dans un milieu rocheux (fissurés ou non) et ne prend pas nécessairement en compte la dissolution « active ». Parmi ces méthodes, il peut être cité l'approche multiphasique à interface diffuse (DIM) et l'approche Arbitrary Lagrangian-Eulerian (ALE).

#### IV. **Exemple de couplages Hydro-Chimiques (HC) et Hydro-Méca-Chimiques (HMC)**

La mise en place de couplage entre les différents processus est comme décrit précédemment dépendant des échelles et des phénomènes étudiés. Les équations générales présentées précédemment doivent être modifiées afin de prendre en compte les interactions entre ces processus et de les hiérarchiser entre relation forte et relation faible. Énoncé simplement quel phénomène sera jugé prédominant par rapport à un autre et l'affectera. Une grande partie des calculs associant la chimie (C) avec la poromécanique (HM) est utilisée via un couplage entre différents codes de calcul du fait des différences de temporalité entre ces deux phénomènes (Figure 66) ou de la complexité du mode géochimique dans le cas d'une solution à la chimie complexe.



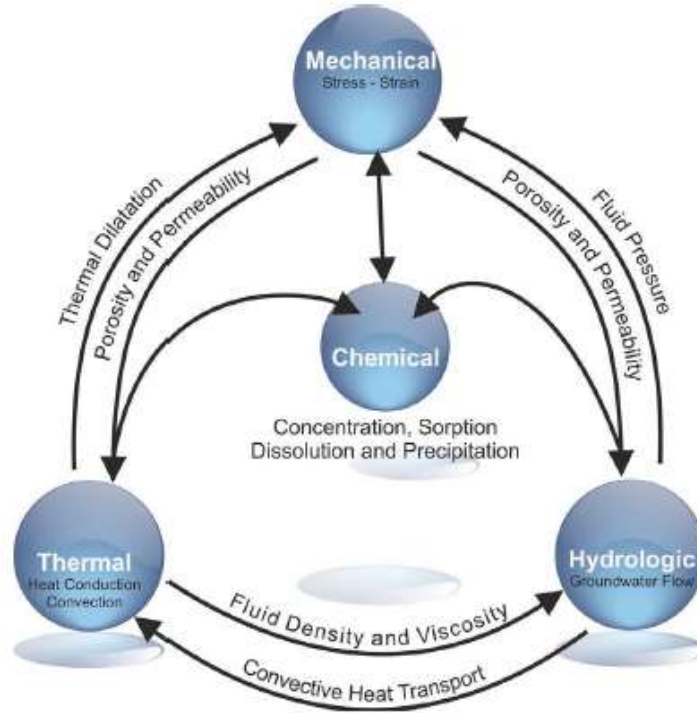


Figure 66 Relations dans les couplages THMC. (Rühaak et al., 2015)

### 1) Modèle Hydro-chimique de la dissolution du gypse et le développement karstique.

Ce modèle de transport réactif est proposé par Águila et al., (2022). Les paramètres constitutifs du modèle (débit, structure géologique...) sont établis à partir de la région du village de Villar de Canas dans le bassin sédimentaire de Loranca (Espagne). L'objectif de ces travaux est la prévision de la formation de conduit karstique, de la genèse du phénomène de fontis ainsi que la contamination des eaux souterraines par le gypse dissous. Les ions  $SO_4^{2-}$  étant néfastes à la qualité des eaux souterraines. La genèse du conduit karstique est initiée à partir d'une fracture pré définie et les processus se déroulent en milieu saturé.

Ils se basent sur le code géochimique Eq3/6 couplé au logiciel Core<sup>2D</sup> pour l'élaboration d'un maillage 2D représentant le massif. Leur modèle permet de considérer une chimie complexe avec des réactions à l'équilibre. Le modèle est ainsi utilisé pour une solution comprenant 35 espèces chimiques et interagissant avec 7 phases minérales (voir Annexe I.1.E). L'ensemble des phénomènes de dissolution-précipitation dans le système et les constantes de réaction est considéré à 25°C. L'effet des réactions de dissolution sur la porosité est intégré dans le logiciel de maillage via l'équation de Kozeny-Carman (éq 1.4.20). Les valeurs utilisées sont définies dans le Tableau 15.

Tableau 15 Paramètres hydrauliques et de transport utilisés par Águila et al., (2022).

Zone	Conductivité hydraulique K (m/jours)	Porosité, $\Phi$ (%)	Dispersivité, $\alpha$ (m)	Coefficient de diffusion de ?, D (m <sup>2</sup> /s)
Roche	$7 \cdot 10^{-5}$	0,045	0,025	$3,53 \cdot 10^{-12}$
Discontinuité	110	0,95	0,025	$8,34 \cdot 10^{-11}$

Ils utilisent un système roche-fissure pour tester différentes compositions de solution et de distribution minéralogique. Il est détaillé ici le cas numéro 1, qui représente un massif homogène de 2 m par 2 m avec environ 82% de gypse, la discontinuité est placée en bas du massif modélisé (Figure 67). Leurs simulations sur une période de 1 000 ans mettent en évidence le développement du conduit karstique où se localise l'essentiel de la circulation hydraulique. En parallèle, la matrice composée essentiellement de gypse présente une régression d'environ 40 cm et un gradient d'altération de quelques dizaines de centimètres.

L'estimation du taux de dissolution est de 0,375 mm/an, ce qui est concordant avec les estimations proposées par une partie des auteurs présents Figure 58.

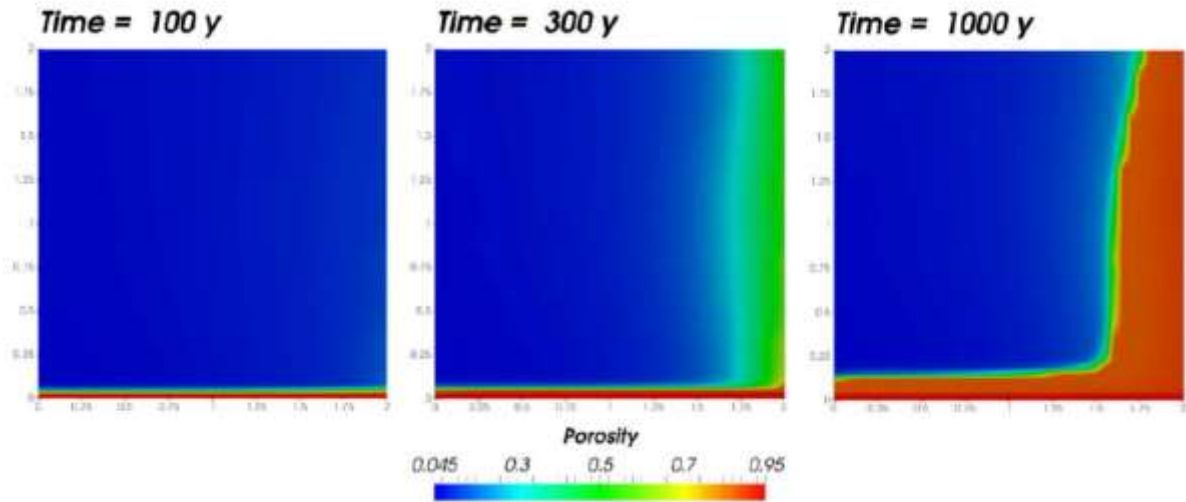


Figure 67 Évolution de la porosité dans le scénario 1 de Águila et al., (2022).

Ce type de modèle couplant la géochimie permet de pouvoir simuler des phénomènes proches des conditions naturelles notamment aux niveaux de la complexité du milieu (espèces chimiques, phases minérales hétérogènes). Toutefois, leur utilisation pour la modélisation de massif prenant en compte des écoulements hydrauliques nécessite des couplages à des codes en éléments finis parfois difficiles à mettre en place. Dans cet exemple, la chimie permet de contrôler la porosité et la perméabilité mais pas les interactions avec les aspects mécaniques, nécessitant que le logiciel utilisé puisse les effectuer. Par exemple, le logiciel Hydrus servant d'équivalent à CORE2D dans la simulation d'écoulements réactionnels avec PhreeqC, ne permet pas ce genre d'opération. La réalisation d'un couplage HM+C à partir de logiciel géochimique apparaît donc comme nécessitant presque obligatoirement un couplage avec un code aux éléments finis pour sa partie Hydromécanique.

## 2) Couplage Hydro-chimique du gypse par la Méthode d'Interface Diffuse (DIM)

L'INERIS (Institut national de l'environnement industriel et des risques) a effectué un important travail pour le développement de modèles numériques permettant de modéliser la formation de cavité liée à la dissolution des roches salines (injection d'acide, de CO<sub>2</sub>, dissolution...), notamment le gypse (Luo et al., 2012, 2014; Jianwei et al., 2015; Guo et al., 2015, 2016; Laouafa et al., 2021, 2019). Leurs travaux sont principalement basés sur la Méthode d'Interface Diffuse (DIM). Ainsi, le modèle proposé prend peu en compte les effets thermiques, comme celui qui pourrait être produit pour le stockage de radionucléides.

Dans le cas d'un modèle de dissolution active, le paramètre principal à suivre est la porosité (ou fraction volumique du fluide) et son évolution (Guo et al., 2016; Ouraga and Laouafa,

2020). Le principe de cette méthode est schématisé en Figure 68. (2) est la zone d'interface diffuse et son épaisseur est calculée à partir du champ de porosité. Dans cette méthode, l'interface est considérée comme une zone de transition dans laquelle les propriétés évoluent rapidement mais de manière régulière. Le milieu est continu sans distinction solide/liquide, la distinction se faisant via la porosité proche de 1 pour le vide et faible pour le solide. L'interface dans le domaine est contrôlée par un coefficient d'échange  $\alpha$  et l'épaisseur de l'interface est obtenue via la résolution d'équation aux dérivés partielles. Ce coefficient est arbitraire et doit simplement respecter la condition nulle lorsque le point matériel est strictement solide ou liquide (vaut 0 en limite de valeurs). Plus  $\alpha$  est grand plus l'interface est fin.

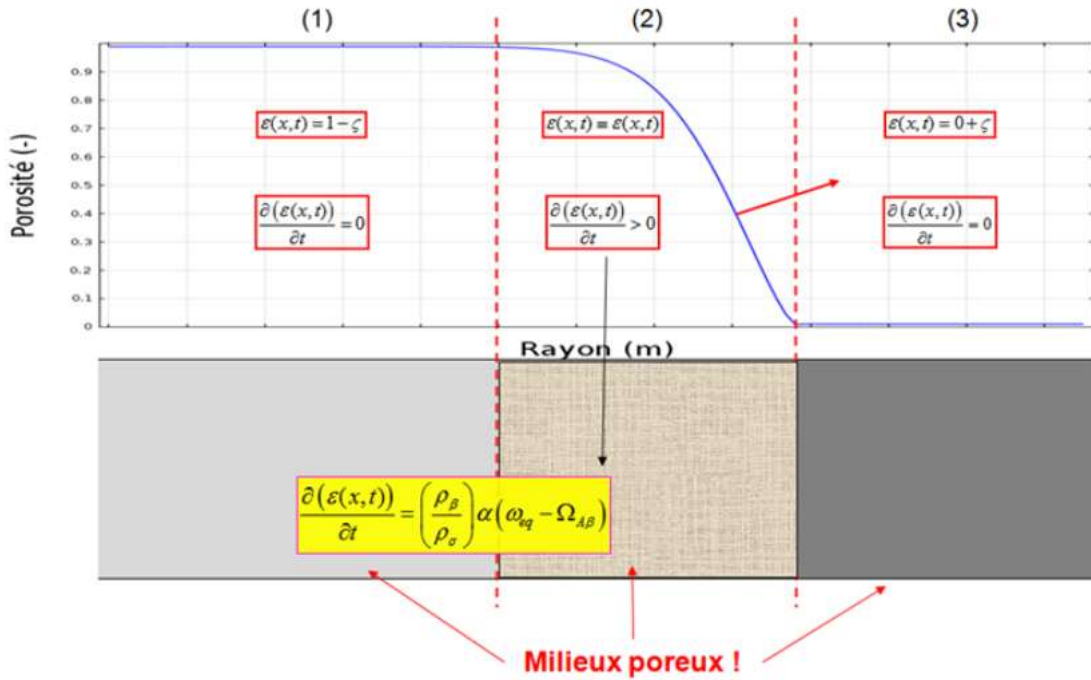


Figure 68 Représentation schématique de la zone d'interface diffuse. (Guo et al., 2016)

La méthode se base sur la moyenne volumique à l'échelle microscopique vers l'échelle macroscopique. Elle suppose que la somme moyennée de la variable microscopique est transposé à l'échelle macroscopique en plus d'une déviation de fluctuation. Le Maoult (2020), note que cette méthode apparait bien adapté aux écoulements aux milieux poreux, bien que cette interface ne soit pas toujours réellement justifiée. Elle présente une bonne propriété de conservation de la masse et intègre directement les phénomènes diffusifs via le traitement thermodynamique.

Le modèle est réalisé en faisant quelques hypothèses initiales pour le simplifier dans son élaboration, mais sans réellement impacter le fonctionnement de la réaction. La première est que l'activité du soluté est isotrope et homogène dans l'ensemble de la solution, notamment à proximité de la phase solide. La seconde est qu'il n'y a pas de précipitation. Ainsi la concentration en solution reste toujours inférieure ou égale à la concentration de saturation ( $C_{sat}$ ).

La dernière simplification est faite en ne considérant qu'une seule espèce chimique. Dans les faits, la dissolution génère de nombreux produits de réactions intermédiaires et finaux. Par exemple, la dissociation du gypse peut générer du  $H^+$ ,  $OH^-$ ,  $SO_4^{2-}$ ,  $HSO_4^-$ ,  $H_2SO_4$ ,  $Ca^{2+}$  ... Pour le gypse, les différences entre les constantes de dissolution de ces différents éléments sont faibles et peuvent donc se considérer identiques. Ainsi le modèle est basé sur le suivi de l'ion  $Ca^{2+}$ .

Le modèle est comme décrit dans la partie précédente (voir D.II.B) basé sur le principe de l'équilibre des volumes massiques.

Le problème du transfert massique à l'échelle du pore se présente ainsi sous la forme (éq 1.D.30 et éq 1.D.31).

$$\frac{\partial \rho_l}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_l \mathbf{v}_l) = 0 \quad \text{dans } V_l \quad (\text{éq 1.D.30})$$

$$\frac{\partial \rho_l w_l}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_l w_l \mathbf{v}_l) = \nabla \cdot (\rho_l w_l \mathbf{D}_l) \quad \text{dans } V_l \quad (\text{éq 1.D.31})$$

Avec  $v_l$ , la vitesse du fluide,  $V_l$ , le volume de la phase liquide,  $w_l$  la fraction massique du soluté (ici  $\text{Ca}^{2+}$ ) en solution et  $D$  le coefficient de diffusion.

Les conditions aux limites pour le bilan de masse des pseudo-composants à l'interface solide-liquide (de la normale sortante  $n_{ls}$ ) peuvent être écrites comme une condition cinétique (éq 1.D.32) :

$$\mathbf{n}_{ls} \cdot (\rho_l w_l (\mathbf{v}_l - \mathbf{w}_{sl}) - \rho_l w_l \mathbf{D}_l) = -M k_s \left(1 - \frac{w_l}{w_{eq}}\right)^n = \mathbf{n}_{ls} \cdot (-\rho_s \mathbf{w}_{sl}) \quad \text{dans } A_{ls} \quad (\text{éq 1.D.32})$$

Avec  $\rho_l$  et  $\rho_s$ , les densités du fluide et du squelette,  $w_{sl}$  la vitesse à l'interface,  $M$  la masse molaire du pseudo-composé (ici le  $\text{Ca}^{2+}$ ),  $k_s$  le taux de dissolution,  $n$  l'ordre chimique de la réaction,  $w_s$  la fraction massique du pseudo composé dans le squelette et  $A_{ls}$  la surface interface entre le solide et le liquide. La vitesse de l'interface est jugée négligeable par rapport à la vitesse du fluide ( $10^{-8}$  contre  $10^{-5}$  ou  $10^{-6}$  m/s) pour le milieu géologique.

À échelle microscopique, l'équilibre de la balance de masse est établi par les équations de Navier-Stokes comme suit (éq 1.D.33) :

$$\rho_l \frac{\partial \mathbf{v}_l}{\partial t} + \rho_l \mathbf{v}_l \cdot \nabla \mathbf{v}_l = -\nabla \rho_l \mathbf{g} + \eta_l \nabla^2 \mathbf{v}_l \quad \text{dans la phase liquide} \quad (\text{éq 1.D.33})$$

$\mathbf{g}$ , la gravité,  $\eta_l$  la viscosité du fluide

Le changement à l'échelle macroscopique entraîne un domaine régi par l'écoulement de Darcy tel que les équations d'équilibres de masses deviennent (éq 1.D.34a, b, c).

$$\frac{\partial (\varepsilon_s \rho_s)}{\partial t} = K_g \quad (\text{éq 1.D.34a})$$

$$\frac{\partial (\varepsilon_l \rho_l)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_l \mathbf{V}_l) = -K_g \quad (\text{éq 1.D.34b})$$

$$\frac{\partial (\varepsilon_l \Omega_l \rho_l)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_l \Omega_l \mathbf{V}_l) = \nabla \cdot (\varepsilon_l \rho_l \mathbf{D}_l \cdot \nabla \Omega_l) - K_g \quad (\text{éq 1.D.34c})$$

Où  $\varepsilon_s$  et  $\varepsilon_l$  la fraction volumique du squelette et la porosité,  $K_g$  l'échange de masse de l'espèce dissoute.  $\mathbf{V}_l$  ; la vitesse moyenne superficielle.  $\Omega_l$ , moyenne intrinsèque de la fraction massique dissoute de l'espèce considérée ;  $\mathbf{D}_l$  le tenseur de dispersion défini par l'équation (éq 1.D.35).

$$\mathbf{D}_l = \frac{D_l}{\tau} \mathbf{I} + \alpha_T \frac{\|\mathbf{V}_l\|}{\varepsilon_l} \mathbf{I} + (\alpha_L - \alpha_T) \frac{\mathbf{V}_l \mathbf{V}_l}{\|\mathbf{V}_l\| \varepsilon_l} \quad (\text{éq 1.D.35})$$

Où  $\tau$  est la tortuosité,  $\alpha_T$  et  $\alpha_L$  la dispersivité transversale et longitudinale selon la géométrie du milieu poreux. Et l'écoulement est contrôlé ici à cette échelle par la loi de Darcy-Brinkman (éq 1.D.36).

$$\rho_l \frac{\partial \mathbf{V}_l}{\partial t} + \rho_l \mathbf{V}_l \cdot \nabla \mathbf{V}_l = -(\nabla P_l - \rho_l \mathbf{g}) + \eta_l \nabla^2 \mathbf{V}_l - \eta_l \mathbf{K}_l^{-1} \cdot \mathbf{V}_l \quad (\text{éq 1.D.36})$$

Dans le cas d'une roche, la perméabilité est suffisamment faible pour que d'après Darcy, la vitesse d'écoulement se détermine comme suit (éq 1.D.37) :

$$V_l = \frac{K_l}{\eta_l} \cdot (\nabla P_l - \rho_l \mathbf{g}) \quad (\text{éq 1.D.37})$$

La constante de réaction ( $K_g$ ) peut alors se déterminer en fonction de la surface de réaction telle que (éq 1.D.38) :

$$K_g = -a_{vl} M \left(1 - \frac{\Omega_l}{w_{eq}}\right)^n k_{s,eff} + a_{vl} M \left(1 - \frac{\Omega_l}{w_{eq}}\right)^{n-1} k_{s,eff} \mathbf{h}_1^* \cdot \nabla \Omega_l \quad (\text{éq 1.D.38})$$

Où  $a_{vl}$  est la surface spécifique ( $\text{m}^{-1}$ ),  $h_1$  est le coefficient additionnel du gradient de masse ( $\text{mol} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ ),  $M$  la masse molaire du calcium ( $\text{kg} \cdot \text{mol}^{-1}$ ),  $M_g$  la masse molaire du gypse ( $\text{kg} \cdot \text{mol}^{-1}$ ),  $K_g$  : taux de masse dissoute ( $\text{Kg} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$ ).  $w_{eq}$  : équilibre de la fraction massique de Ca,  $k_{s,eff}$  est le coefficient de cinétique de réaction ( $\text{mol} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ) et  $\Omega_l$  moyenne de la fraction massique dissoute de  $\text{Ca}^{2+}$ .

La dissolution est considérée uniquement à l'interface solide-liquide sans phénomène d'évolution interne (gradient). Cette hypothèse est formulée par la faible perméabilité du gypse. Il est présenté ici l'exemple de l'application du modèle à la dissolution d'une lentille de gypse. Ce modèle vise uniquement à déterminer la formation du vide et n'intègre pas de relation mécanique. La régression atteint ainsi 60 m du volume initial après une période de 30 ans (Figure 69).

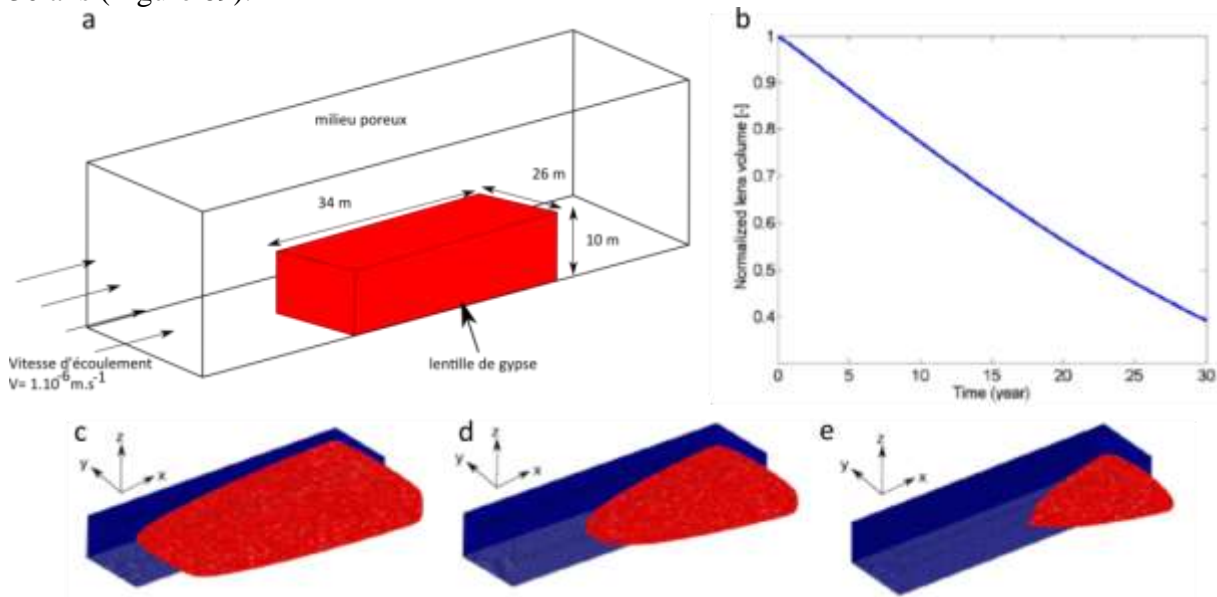


Figure 69 Exemple de dissolution d'une lentille de gypse par le modèle DIM. a : schéma du modèle élaboré à l'état initial. b : effet de la dissolution sur le volume de gypse initial. c, d et e : évolution de la lentille de 3, 15 et 30 ans. D'après (Guo et al., 2016)

### 3) Couplage Hydro-mécano-chimique pour le stockage du $\text{CO}_2$

Dans des travaux portants sur le stockage du  $\text{CO}_2$  en milieu géologique, Bemer et son équipe ont produit plusieurs publications (Bemer et al., 2016; Bemer, E. et al., 2004; Bemer and Lombard, 2009; Egermann et al., 2006; Bemer and Lombard, 2013) sur le risque de dissolution dans le cas d'un stockage en milieu carbonaté.

Ils ont ainsi développé un montage expérimental en vue du développement d'un ensemble d'équations numériques permettant la prise en compte de la dissolution en plus de la contrainte mécanique comme moteur d'altération. Le montage expérimental qui est utilisé dans leurs travaux ne sera pas abordé ici, pour se limiter à l'analyse du modèle numérique et de ses équations. Le milieu poromécanique est ici défini comme un milieu continu, homogène

et isotrope respectant les principes énoncés ci-avant et proposés par Coussy, (2004). Le fluide est considéré comme visqueux et compressible. Les conditions d'écoulements de réaction reposent sur le respect des deux premières lois de la thermodynamique.

L'augmentation de la porosité est supposée équivalente à la dissolution et donc la dégradation du matériau. La porosité peut ainsi se définir comme la somme de la porosité initiale et de la porosité issue de la dégradation chimique (éq 1.D.39).

$$\Phi = \Phi_0 + \Phi_{ch} \quad \text{avec à } t_0 \quad \Phi_{ch} = 0 \quad (\text{éq 1.D.39})$$

La dissolution s'exprime ici à partir du volume poral. Elle suppose une concentration constante du fluide en sortie du modèle et attribue à une unité de volume de fluide sortant, une unité de volume dissous tel que (éq 1.D.40) :

$$\Delta\Phi = \frac{(V_b^0 - \Delta V_b) - V_s^0}{(V_b^0 - \Delta V_b)} - \Phi_0 \quad (\text{éq 1.D.40})$$

Avec  $V_b^0$  et  $V_s^0$  le volume de la porosité et du squelette initial et  $\Delta V_b$  l'augmentation du volume poral avec la dissolution.

L'équation d'équilibre régissant la quantité de mouvement est définie par l'équation suivante (éq 1.D.41) :

$$\vec{\nabla} \cdot \underline{\underline{\sigma}} + \rho \vec{g} = \vec{0} \quad (\text{éq 1.D.41})$$

avec  $\rho = (1 - \Phi)\rho_s + \Phi\rho_f$  la densité massique du milieu poreux et  $g$  l'accélération de la gravité. Le tenseur de contrainte devient ainsi l'équation 1.4.40. Où la variation de pression de pore (éq 1.D.42) et le module de Biot (éq 1.D.43) sont présents.

$$\underline{\underline{\sigma}} = \left( K_0 - \frac{2G}{3} \right) \varepsilon_v \underline{\underline{1}} + 2G \underline{\underline{\varepsilon}} - b p \underline{\underline{1}} \quad (\text{éq 1.D.42})$$

Avec

$$\frac{dp_p}{M} = -b \partial \varepsilon_v + \frac{\partial m}{\rho f l} \quad (\text{éq 1.D.43})$$

où

$$\frac{1}{M} = \frac{1}{N(\Phi_{ch})} + \frac{\Phi_0 + \Phi_{ch}}{K_{fl}} \quad (\text{éq 1.D.44})$$

Le modèle proposé est établi à partir d'une relation entre la porosité et la dégradation des contraintes mécaniques (Figure 70). L'effet de la dissolution au travers de la porosité est ainsi pris en compte au travers des deux paramètres mécaniques que sont  $K_0$  et  $G$ , respectivement les modules d'incompressibilités et de cisaillement. La porosité influe sur leurs valeurs suivant les relations (éq 1.D.45 et éq 1.D.46).

$$K_0 = \frac{(1-\Phi)K_s}{1-\Phi_0 + \Phi_0 \frac{K_s}{K_c}} \quad (\text{éq 1.D.45})$$

$$G = \frac{(1-\Phi)G_s}{1-\Phi_0 + \Phi_0 \frac{G_s}{G_c}} \quad (\text{éq 1.D.46})$$

Ils supposent le comportement élastique linéaire et isotrope. Les paramètres élastiques considèrent un matériau poreux via la relation du paramètre élastique de la matrice solide ( $K_s$  et  $G_s$ ) avec leurs équivalents poreux ( $K_c$  et  $G_c$ ). Bemer, E. et al., (2004) notent que les relations  $\frac{G_s}{G_c}$  et  $\frac{K_s}{K_c}$  pour les différents calcaires étudiés varient de manière négligeable avec la porosité et qu'ils peuvent les définir constants par des valeurs respectivement de 0,12 et 0,07.

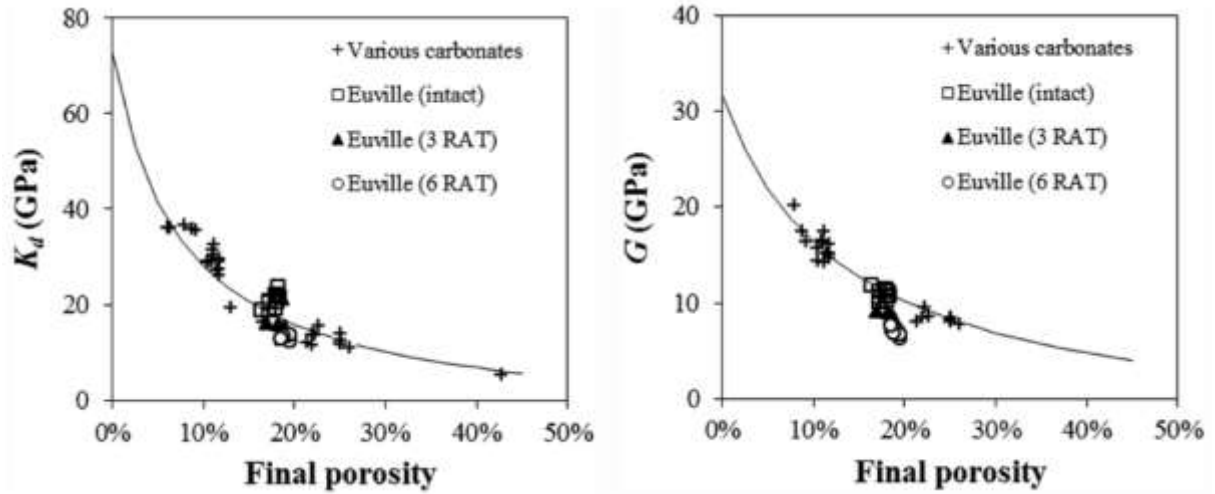


Figure 70 Evolution de module d'incompressibilité drainé ( $k_d$ ) et du module de cisaillement ( $G$ ) du calcaire en fonction de la porosité.

Ainsi, la dissolution est prise en compte de manière indirecte suivant une relation constante et linéaire sans prendre en compte le niveau de saturation et donc de gradient d'altération. De même la saturation étant toujours supposée totale, il n'est pas pris en compte l'accélération du débit sur le temps long et la possibilité d'un fluide sous saturée. C'est ainsi que la dissolution chimique est prise en compte ici.

Ce modèle poromécanique est repris par Tounsi et al., (2020). Ces derniers sans modifier la relation entre porosité et mécanique développent la relation entre la porosité et la dissolution du  $CO_2$ . Pour cela leurs travaux sont réalisés sous le code aux éléments finis Disroc permettant de modéliser et de suivre les réactions chimiques pour un élément donné. L'élément choisi ici est l'ion calcium ( $Ca^{2+}$ ).

Le premier élément à prendre en compte est l'effet de la pression de  $CO_2$  injecté (donc de la quantité) sur la solubilité de la calcite ( $CaCO_3$ ). Le dioxyde de carbone se solubilisant dans l'eau est un phénomène qui augmente la dissolution de la calcite (Ek, 1973; Al-Droubi et al., 1978; Sjöberg, 1976) et de sa concentration de saturation suivant la relation suivante (équ1.D.47).

$$[Ca^{2+}]_{eq}^3 = \frac{10^{-6} P_{CO_2}}{4} \quad (\text{équ1.D.47})$$

Ils intègrent également le phénomène d'écoulement et de saturation en fluide de la matrice poreuse via la loi De Darcy (équ1.D.48 et équ1.D.49).

$$\nabla \cdot \left( \frac{k}{\eta} \nabla p \right) = C \frac{\partial p}{\partial t} + r \quad (\text{équ1.D.48})$$

Avec

$$C = S_r \left( \frac{\Phi}{K_f} + \frac{b - \Phi_0}{K_s} + \frac{\Phi}{S_r} \frac{DS_r}{Dp} \right) \text{ et } r = S_r b \frac{\partial \varepsilon_v}{\partial t} \quad (\text{équ1.D.49})$$

Où  $k$  est la perméabilité intrinsèque du matériau,  $\eta$  la viscosité dynamique du fluide,  $\nabla p$  le gradient de pression,  $\varepsilon_v$  est le composant volumique du tenseur de déformation linéarisé,  $\Phi_0$  la porosité initiale,  $C$  le coefficient de stockage du milieu poreux,  $K_f$  et  $K_s$  sont les coefficients d'incompressibilités du fluide et du squelette,  $r$  le terme source du couplage hydro-chimique et  $S_r$  le taux de saturation. Dans le cas où la saturation est totale, le coefficient de stockage ( $C$ ) est égal à la porosité.

Cet écoulement hydraulique va permettre de prendre en compte le phénomène d'advection. Il s'agit du renouvellement en fluide sous saturé à la surface de contact entre le fluide et le squelette solide permettant d'entretenir la réaction au niveau local. La dissolution s'arrête à l'interface solide-liquide, une fois la concentration de saturation ( $C_{sat}$ ) atteinte si les éléments dissous ne sont pas exportés pour maintenir la solution sous saturée.

L'évacuation des ions dissous (ici  $Ca^{2+}$ ) dans les réactions chimiques est réalisée suivant deux mécanismes complémentaires. Il s'agit de l'advection et de la diffusion. La diffusion chimique est la migration des éléments en solutions par simple gradient afin d'équilibrer et rendre homogène la solution. Elle est régie par la loi de Fick. L'advection est la contribution à l'exportation des produits de réactions via l'écoulement hydraulique. Ainsi, la cinétique de dissolution ( $R(c)$ ) est déterminée par ces deux phénomènes suivant la relation (éq1.D.50) :

$$\Phi \frac{\partial c}{\partial t} + \vec{v} \cdot \vec{\nabla} c - \vec{\nabla} \cdot (D\Phi \vec{\nabla} c) = R(c) \quad (\text{éq1.D.50})$$

Avec  $v$  la vitesse d'écoulement de Darcy et  $D$  le coefficient de diffusion dans le fluide.  $R(c)$  représente la production d'ion calcium en cours de réaction suivant à partir de la constante de dissolution ( $A$ ) et de la surface réactive ( $S$ ) (Sjöberg, 1976) (éq1.D.51).

$$R(c) = AS(C_{eq} - C)^n \quad (\text{éq1.D.51})$$

Il est ainsi obtenu une vitesse de dissolution de la calcite prenant en compte l'avancement de la réaction à partir des paramètres de diffusion et d'écoulement qui vont entretenir la réaction. À partir de cette vitesse de libération des ions calciums, il est possible de déterminer la porosité à partir de la masse molaire de la calcite ( $M_{cal}$ ) et de son volume molaire ( $\rho_{cal}$ ) suivant l'équation suivante (éq1.D.52) (Ghabezloo and Pouya, 2006).

$$\frac{\partial \Phi}{\partial t} = \frac{M_{cal}AS}{\rho_{cal}} (C_{eq} - C)^n \quad (\text{éq1.D.52})$$

Il est ainsi obtenu un modèle HMC permettant de modéliser la dissolution de la calcite sous injection de dioxyde de carbone. Les effets de la dissolution affectent directement la porosité via l'équation éq1.4.50 depuis les propriétés massiques du calcaire et se répercute via la variation de porosité ( $\Phi_{ch}$ ) sur les paramètres élastiques ( $K_0$  et  $G$ ) (éq1.D.43 et 44) déterminant les propriétés poroélastiques du massif considéré.

#### 4) Couplage THM+C pour le stockage de déchets radioactifs

Poulet et al., (2012) ont proposé un modèle THM+C prenant en compte la dissipation de la chaleur et ces effets sur les plans chimiques et mécanique. Le cadre applicatif pour ce type de développement porte principalement sur les phénomènes lithosphériques (Karrech et al., 2011b; Fuisseis et al., 2012; Karrech et al., 2018; Karrech and Dong, 2023) et le stockage de déchets nucléaires. La méthode est développée à partir du couplage des logiciels EscripRT pour la partie Mécanique avec ABAQUS pour la Chimio-Hydro-Thermique. Le modèle est développé suivant la théorie des milieux continus tel que développé par (Coussy, 2004) dans des conditions saturées (partie II.B). Pour rappel, le VER ( $\Omega$ ) à l'échelle macroscopique considère le solide et d'un fluide saturant l'espace poral dans un seul ensemble. Les déformations sont considérées non uniformes et inélastiques.

Afin de faciliter le développement des équations et l'effet de la dissipation de chaleur, il a été pris une approche via le modèle de l'énergie libre de Helmholtz  $\psi$  ( $\epsilon_{ij}, \alpha_{ij}, T, D$ ) où  $\epsilon$  est le tenseur de déformation,  $\alpha$  le tenseur de déformation inélastique,  $T$  la température et  $O$  l'endommagement. Ce modèle complétée par le deuxième principe de la thermodynamique permet de définir des relations constitutives via l'inégalité de Clausius-Duhem, qui pour un comportement linéaire isotrope s'exprime comme suit (éq1.D.53, 54). Avec  $\sigma$  le tenseur de contrainte de Cauchy,  $s$  l'entropie et  $Y$  la force thermodynamique associée à  $O$ .



$$\sigma = (1 - O) \left( E - \frac{2}{3} G \right) tr(\epsilon_e) + 2G(1 - O)\epsilon_e \quad (\text{éq1.D.53})$$

$$s = c(T - T_0) + 3\alpha E(1 - O)tr(\epsilon_e) \quad (\text{éq1.D.54})$$

Où E et G sont les modules d'élasticité et de cisaillement, c la chaleur,  $\alpha$  le coefficient d'expansion thermique,  $\sigma_H$  la pression hydraulique,  $\sigma_{eq}$  la contrainte équivalente. Ces équations sont déduites des travaux de Lemaitre and Chaboche (1985), combinés à la dissipation de l'énergie proposée par Karrech et al. (2011a). Le squelette est défini par une loi de comportement viscoplastique dans l'hypothèse de petite déformations avec de la friction (Karrech et al., 2011b).

La dégradation du matériau considère inclus l'augmentation de la porosité via le processus chimique ( $\Phi_c$ ) mais également via la déformation mécanique élastique ( $\Phi_m^e$ ) et plastique ( $\Phi_m^p$ ) tel que (éq1.D.55) :

$$\Phi - \Phi_0 = \Phi_m^e + \Phi_m^p + \Phi_c \quad (\text{éq1.D.55})$$

Ils considèrent que l'essentiel de l'évolution de la porosité sera causée par la déformation plastique et définissent donc l'ensemble de la variation de porosité via l'équation d'endommagement-porosité suivante (éq1.D.56 et 57).

$$\Phi_m^p = (\Phi_{max} - \Phi_0)O^{3/2} \quad (\text{éq1.D.56})$$

et

$$O = \lambda \left( \frac{1}{(1-D)^{n+1}} - 1 + \left( \frac{Y}{H} \right)^k \right) \quad (\text{éq1.D.57})$$

Où  $\lambda$  est le multiplicateur de Lagrange, H et K des constantes propres aux matériaux.

La dissolution chimique est incluse dans le modèle (via la loi d'advection-diffusion) mais en faisant l'hypothèse que les réactions sont à l'équilibre et se réalisent plus rapidement que les pas de temps à considérer (plusieurs milliers d'années) pour les cas étudiés. L'équilibre chimique est malgré tout calculé en fonction de la pression et de la température suivant le principe de l'énergie libre de Gibbs minimale (chapitre 1.B).

L'écoulement hydraulique est régi par la loi de Darcy tel que précédemment décrite (éq1.D.17) à laquelle est intégré l'effet de la température, de la chimie et de la mécanique (éq1.D.58). Elle devient ainsi une équation prenant en compte l'ensemble des paramètres du modèle. L'ensemble des propriétés du fluide (viscosité, densité...) étant évolutive leurs déterminations est implémentées dans le code.

$$\beta_r \Phi \rho_f \frac{dp}{dt} - \nabla \cdot \left( \rho_f^2 \frac{k}{\mu_f} \nabla p \right) = -\nabla \cdot \left( \rho_f^2 \frac{k}{\mu_f} \underline{b} \right) - \Phi \rho_f \underline{v}_s + \alpha_r \Phi \rho_f \frac{dT}{dt} - \gamma_f \Phi \rho_f \frac{dX}{dt} - b \rho_f \frac{d\varepsilon}{dt} \quad (\text{éq1.D.58})$$

L'évolution de la perméabilité est quant à elle directement contrôlée par la porosité via la relation de Blake-Kozeny (éq1.4.59) (autre forme de l'équation de Kozeny-Carman déjà présentée (éq 1.4.20).

$$k = k_0 \left( \frac{\Phi}{\Phi_0} \right) \left( \frac{1-\Phi_0}{1-\Phi} \right)^2 \quad (\text{éq1.D.59})$$

La notion de pression effective est également présente au travers du module et du coefficient de Biot tel que défini précédemment (éq 1.D.7 et éq 1.D.10).

Le transfert de chaleur pour définir l'équilibre thermique est basé sur l'équation standard d'advection diffusion et un terme source de chaleur émise par le cisaillement (éq 1.D.60).

$$\overline{\rho C_p} \frac{\partial T}{\partial t} + (\rho C_p)_f q \cdot \nabla T - \nabla(\overline{\kappa} \nabla T) = Q + \chi \sigma^{eq} \dot{\epsilon}^{diss} \quad (\text{éq 1.D.60})$$

$\overline{\rho C_p}$  est une chaleur spécifique moyenne pour la roche (p),  $\kappa$  la conductivité thermique moyenne, Q une source de chaleur radiogénique,  $\epsilon_{diss}$  le taux de dissipation lié au fluage et déformations plastiques.  $\chi$  est le coefficient de conservation thermique de Taylor-Quiney.

Une des applications proposée pour ce modèle est celui de l'albitisation (Figure 71). Il s'agit d'un processus de substitution des feldspaths (plagioclase...) par de l'albite (éq 1.D.61). Ce phénomène est fortement contrôlé par la température et le ratio  $K^+/Na^+$ .

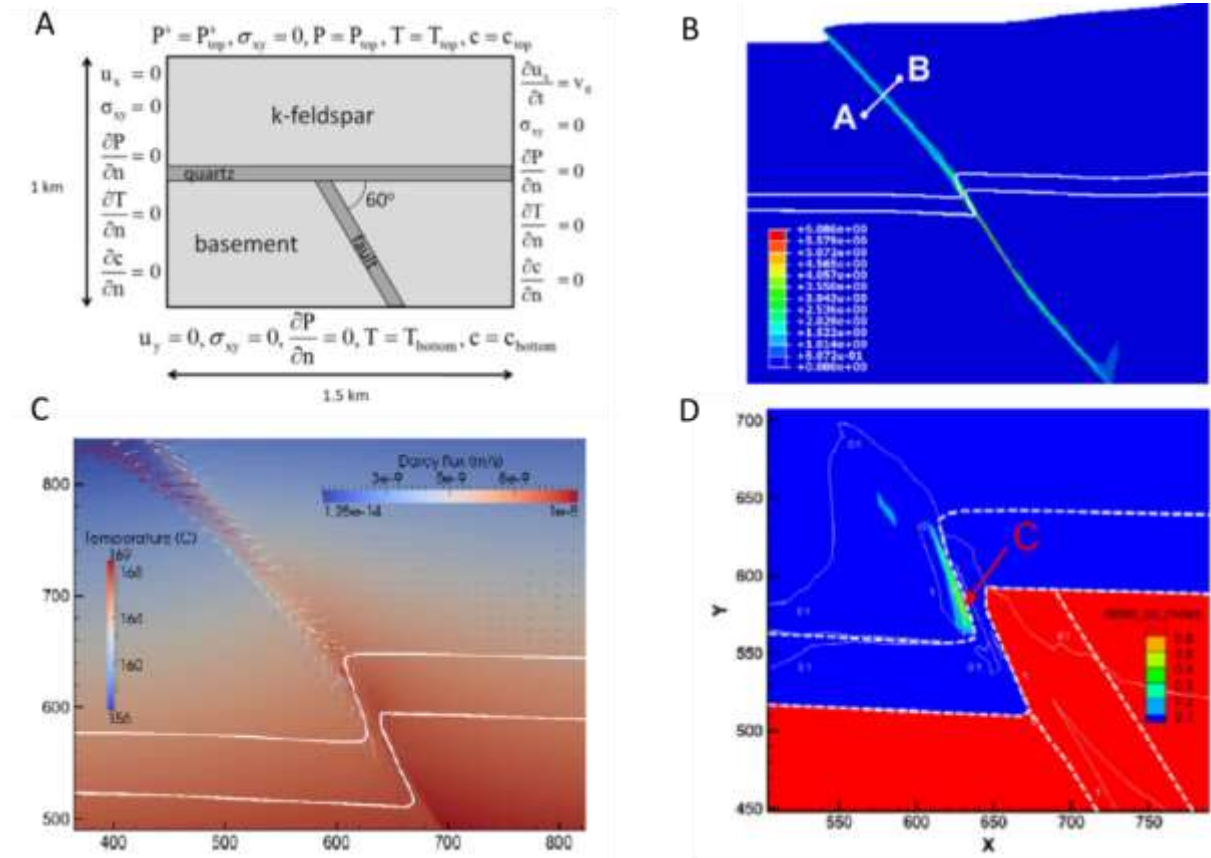
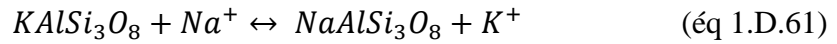


Figure 71 Modélisation du phénomène d'albitisation sur 30 000 ans. a : géométrie et condition initiales. b : evolution mécanique du massif à 30 000 ans. c : evolution de la perméabilité et de la température après 30 000 ans. D : distribution de l'albite. D'après (Poulet et al., 2012).

Le modèle développé propose une évolution des paramètres mécaniques à partir de celle de la porosité et de la perméabilité. Le modèle permet ainsi de déterminer des phénomènes d'évolution des paramètres THMC dans des conditions de minéralisations, d'endommagement à une grande échelle de temps. Ce qui semble plus adapté à des phénomènes de migration et de dégagement de chaleur plutôt qu'un modèle adapté à la formation de cavité sous dissolution par advection, dans l'exemple présent. Le phénomène de dissolution-advection est présenté mais pas illustré dans cet exemple.

*Synthèse : Dans cette partie, il a été abordé les principes généraux permettant de définir un milieu poreux continu et les lois qui s'y appliquent. Ce milieu continu est à la base de la plupart des méthodes de modélisation numériques existantes dans le domaine des milieux rocheux. Et pour n'importe quelle échelle considérée (microscopique, macroscopique...). Les deux principales échelles rencontrées sont l'échelle microscopique, qui va différencier dans son volume élémentaire représentatif (VER) le domaine solide et le domaine liquide et l'échelle macroscopique où ces deux ensembles sont confondus.*

*Chacune des échelles est régit par des ensembles d'équations particulières (Navier-Stokes à l'échelle microscopique et Darcy à l'échelle macroscopique pour l'écoulement), mais repose sur des principes commun comme la conservation de masse où les lois de la thermodynamique. Ces bases communes peuvent permettre de réaliser des changements d'échelles pour adapter les calculs au contexte souhaités.*

*Chaque cas d'expertise nécessite de mettre en avant tel ou tel phénomène et il est complexe de vouloir en développer un pouvant regrouper tout. La relation entre hydromécanique peut déjà nécessiter des couplages entre différents logiciels. La prise en compte des paramètres chimiques et de son effet sur les propriétés mécaniques des matériaux nécessitent généralement des couplages entre des logiciels géochimiques pouvant gérer des calculs réactionnels pour des compositions complexe à des logiciels permettant la modélisation de massif et des circulations hydrauliques en leurs seins, les durées et modes de calculs étant très différents.*

*Il est présenté dans un second temps différents exemples de modélisation incluant des couplages chimiques. Il est établi que ces couplages sont complexes et variés selon l'approche et le contexte étudié (injection de CO<sub>2</sub>, minéralisation...). Cela afin d'illustrer la complexité de l'élaboration de tel système et la nécessaire réflexion à mener dans le choix des hypothèses simplificatrices rendant un code fonctionnel et simple d'usage tout en restant proche des conditions réelles d'un milieu. Ils mettent également en évidence le besoin de bien définir quelles sont les relations à privilégier dans le développement d'un modèle numérique.*

*Ces différentes approches, utilisations de propriétés expérimentales (diamètre de pore), régressions à partir de la surface de contact, relation de Kozeny-Carman... constituent des éléments de réflexion importants dans le développement du modèle proposé dans ce travail.*

### E. Conclusions

Le gypse est une roche sédimentaire de la famille des évaporites. En tant que tel, il se forme principalement dans des zones de dépressions topographiques avec une forte évaporation. Cette perte d'eau entraîne une sursaturation du volume restant et la précipitation des éléments sursaturés. La présence du gypse à la surface terrestre est importante (25%) de la surface. Les dépôts massifs de gypse nécessitent néanmoins des conditions particulières avec des apports fréquents en fluide sous saturée pour permettre la précipitation de dépôts décamétriques.

Les conditions de formations (vitesse de précipitations, composition de l'eau initiale...) vont fortement influencer la morphologie des cristaux de gypse produits. Ces cristaux se forment à partir de noyaux de nucléations où vont s'agglomérer aux ions et générer le cristal. Le gypse est une roche tendre à structure monoclinique. Les éléments vont s'assembler suivant des plans de clivage dont le plus commun est le [010]. Comme l'ensemble des roches de sa famille, le gypse est une roche avec une solubilité forte et rapide pouvant générer rapidement de nombreux désordres (effondrement, glissement...). La diversité de ces morphologies peut-elle avoir un impact sur les propriétés poromécaniques à l'échelle de l'éprouvette (porosité, module élastique ?).

La solubilité du gypse supérieure à 2g/L est fortement influencée par la température entre 0 et 42°C, elle sera favorisée avant de décroître du fait de la déshydratation du gypse en anhydrite. Le gypse se dissout suivant une double cinétique. Ainsi la dissolution est décomposable en deux parties. Une première de quelques dizaines de minutes et une seconde de plusieurs heures au-delà de 90 à 94 % (selon les auteurs) de la concentration de saturation. Cette solubilisation est également sensible à la température pour la vitesse de réaction. L'ajout d'autres éléments pouvant générer des compétitions entre ions réactionnels ou impactés la force ionique peuvent avoir un effet sur la dissolution du gypse.

Le gypse est ainsi une roche soumise au phénomène de dissolution préférentiel qui permet de former des digitations. Ces conduits se forment à partir de variation de porosité, de gradient de pression générant des hétérogénéités sur la surface de dissolution ; Cette dernière étant rapide, il se met en place des conduits canalisant la majorité du flux hydriques et à termes des conduits karstiques. Ces conduits une fois en place vont freiner la dissolution du reste de la masse gypseuse et s'élargir.

Ainsi cette revue bibliographique met en évidence le gypse comme une roche diversifiée en termes de morphologie de cristaux, de structure poreuse sans que ces informations ne soient systématiquement précisées. La présence d'une porosité développée (pouvant atteindre 20 %) pose la question de la faisabilité d'écoulement dans le gypse autrement que par la propagation le long d'une fissure. Cet écoulement peut-il générer un gradient de dissolution en profondeur dans la masse de gypse et pas seulement une régression de surface et si oui de quel ordre de grandeur ?

La modélisation numérique est un outil de calcul puissant permettant la réalisation de calcul HMC toutefois la mise en place de ces calculs nécessitent une réflexion profonde en amont pour poser des hypothèses réalistes mais suffisamment simplifier pour permettre le calcul. Le choix de l'échelle microscopique ou macroscopique apparaît également déterminant selon les objectifs recherchés avec leurs propres lois de référence. Il est présenté différentes approches de modélisations HMC à partir de la géométrie de pore, de la cinétique d'une dissolution par régression de surface.

L'objectif de ce travail de thèse est de contribuer au développement d'une méthode macroscopique permettant d'introduire une dissolution active pénétrant la masse soumise à l'altération et générant un gradient de dissolution.

## **Chapitre 2 : matériaux et méthodes.**



Ce chapitre se divise en deux parties. La première partie vise à présenter l'origine des 6 faciès de gypse échantillonnés dans cette thèse. Le chapitre précédent a décrit les processus de formation du gypse, leurs localisations à l'échelle du bassin sédimentaire. Parmi les six faciès retenus, 4 faciès proviennent de la région parisienne et 2 du Sud-Est de la France. Il s'agit ici d'en décrire l'aspect, les conditions d'obtention et d'affleurements quand cela est possible.

Le choix des faciès est fait pour partie à partir des dénominations de la littérature sur la dissolution du gypse (Zaier, 2021, Toulemont 1986). Il y en fait mention de faciès fer de lance, albastroïde et saccharoïde. Le faciès matriciel est introduit par Zaier, 2021 sans en donner une définition précise. Le gypse de contexte orogénique est introduit en cours de doctorat suite à une opportunité d'approvisionnement dans le cadre de travaux d'expertises.

La seconde partie est consacrée à la description des techniques utilisées pour caractériser et suivre l'évolution des échantillons en cours d'altération, ainsi que les montages développés et utilisés pour simuler la dégradation du gypse. Les protocoles et conditions expérimentales pour déterminer les constantes de dissolution du gypse (température, agitation) sur poudre et plaque sont détaillés également dans ce chapitre.

## A. Matériaux d'étude

### I. Description des formations étudiées

Dans cette première partie, il est abordé la description des sites d'origine des échantillons (front de taille en carrière, carotte) et de leurs morphologies. La caractérisation pétrophysique des échantillons est quant à elle présentée dans le chapitre 3.

#### 1) Le gypse du sud-Est de la France

Les plus anciens échantillons de gypse étudiés sont datés du Trias (- 252 à -201 Ma). L'un provient d'une carrière en activité dans le Sud-Est de la France, à proximité du massif des Baronnies, massif des Préalpes du Sud situé principalement dans le département de la Drôme. Ces terrains appartiennent au bassin sédimentaire provençal (Figure 72). Il s'agit d'un bassin dont l'ouverture remonte au début du Trias. Il est délimité au Nord-ouest par le massif central et son influence océanique était l'océan Téthys situé au Sud-est. Le second gypse provient de carottes de forage issues de la région toulonnaise. Leurs âges sont similaires ainsi que le contexte de dépôt dans le bassin provençal. Mais leur histoire évolutive est divergente, celle de Toulon ayant été affectée par des phénomènes de charriage (voir glossaire) et celui de la carrière par un phénomène de diapirisme.

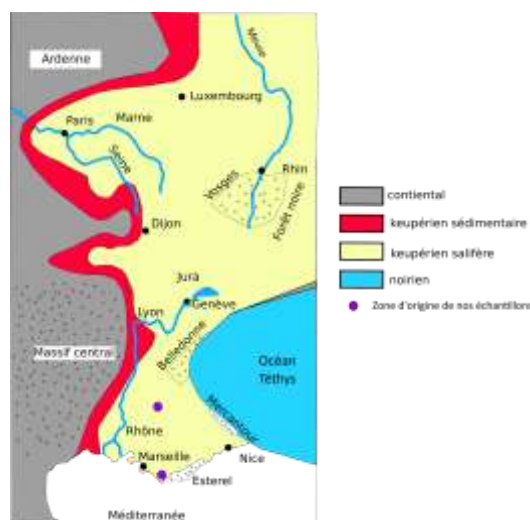


Figure 72 Carte de la France à la fin du Keuper (Delfau, 1974)

A cette époque, le milieu marin est peu profond avec des accumulations de sable et d'argiles. C'est au cours de la période du Keuper que se mettent en place les dépôts gypsifères (Gidon et al., 1991). Les formations gypsifères sont ensuite recouvertes par des formations marneuses et des couches de calcaire. Le gypse commence à subir un phénomène de diapirisme au cours du Jurassique moyen (Figure 73).

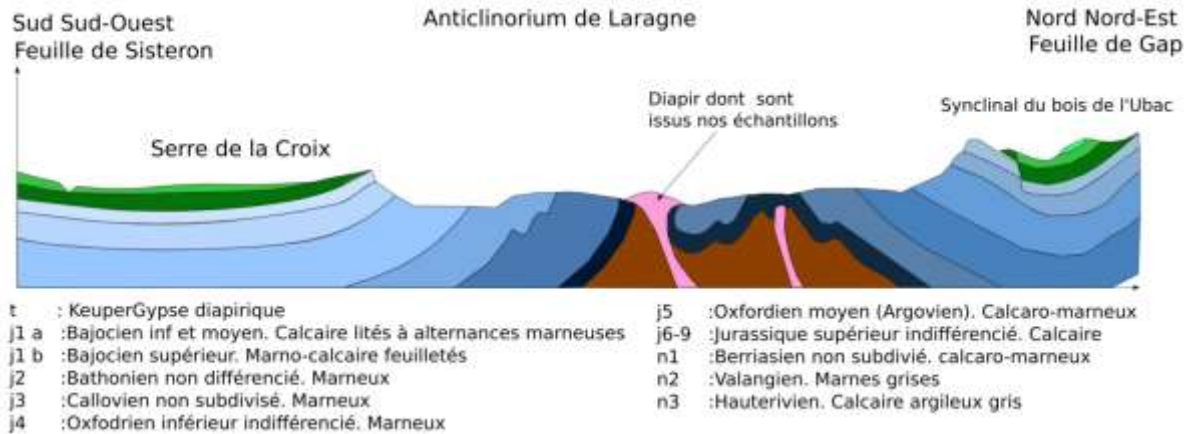


Figure 73 Coupe géologique schématisée de la région dont sont issus les échantillons de gypse saccharoïde à interlits. D'après les coupes de carte géologique de Laragne-Montgélain (1/50 000) (893). Gidon et al., 1991

Dans le cas de plis et de migration verticale, des phénomènes de diapirisme (Aubouin, 1960) se développent. Le diapirisme est un phénomène de remontée à travers les couches sus-jacentes par différence de densité ou de comportement plastique (Foucault et al., 2014). La contrainte étant supérieure dans l'axe vertical, les roches vont alors s'étendre et traverser les couches de recouvrement pour former des diapirs et des couches dites « planche à savon » (Bartel et al., 2014; Fabre and Dayre, 1982). Les sondages réalisés à proximité de la carrière d'où proviennent les échantillons de cette thèse sont d'une profondeur maximale de 60 m. Ils sont issus de la base de données du sous-sol (BSS) à proximité de la carrière dont sont issus les échantillons (BSS002BQYL et BSS002BQYK), ne permettent pas d'identifier le bas de la couche et d'en estimer l'épaisseur.

#### a) Le gypse orogénique

Ce faciès est issu de sondages carottés (Figure 74) réalisés dans la région toulonnaise. Ils sont datés du Trias (indifférencié) et ont été fortement remaniés au cours de leur histoire géologique (nappe de charriage). Les sondages ont été re-carottés en diamètre 50 mm et sciés à 100 mm pour obtenir des éprouvettes d'un élanement de 2. Ce faciès de gypse a été désigné sous la dénomination d'« orogénique ». Il s'agit d'une masse de gypse dont la morphologie initiale n'est pas connue et qui a été impacté par des phénomènes tectoniques. Ce gypse provient d'une nappe de charriage (voir glossaire) proche de Toulon. Il a ainsi été compacté et plissé.



Figure 74 Photographie des sondages utilisés pour la réalisation des éprouvettes.



Les éprouvettes obtenues sont de couleur sombre, massives. Les carottes présentent de nombreux plis et des inclusions de couleurs blanches.

#### **b) Gypse saccharoïde à interlits**

Ce faciès a été obtenu à partir de blocs de gypse provenant d'une carrière des Hautes-Alpes (05). Du fait des conditions sanitaires avec la pandémie de COVID, le bloc a été acheminé par camion et n'a pas été directement sélectionné sur site et il n'a pas été fourni d'information sur sa localisation d'origine dans la masse du gypse. À titre d'information, le sondage BSS002BREA réalisé à proximité de la carrière est donné en annexe II.2.1. Les blocs ont été carottés en diamètre 50 mm pour une hauteur de 100 mm.

Les éprouvettes obtenues sont de couleurs blanches à intercalations brunes et ocre (Figure 75). Ces interlits sont composés d'argiles et d'oxydes. Le gypse est de type saccharoïde blanc en banc centimétriques.

Ce faciès de gypse a été référencé comme « saccharoïde à interlits ». Le gypse saccharoïde est défini ici comme un faciès d'aspect granulaire. Il se compose de cristaux de gypse plus ou moins sphérique de quelques dizaines à centaines de micromètres consolidés entre eux. Ce faciès est dit à interlits de part la présence d'interstratification d'argiles et d'oxydes visibles à l'œil.



Figure 75 Carotte réalisée dans le gypse saccharoïde à interlits

## **2) *Le gypse du bassin de Paris***

Il est utilisé dans ce travail quatre faciès de gypse issu de la région parisienne. Ainsi, bien que la zone d'extension des gypses Cénozoïques (- 66 Ma à l'actuel) du Bassin parisien soit beaucoup plus vaste, nous bornerons notre description à la région parisienne dont sont issus nos échantillons.

Le gypse en Île-de-France est localisé dans deux étages géologiques (Figure 76). Les plus anciens dépôts proviennent du Lutétien (-47 à -40 Ma) et plus particulièrement le lutétien supérieur (marnes et caillasses) dans la couche des marnes et caillasses. La seconde localisation, qui est aussi la plus importante en terme d'épaisseur se trouve dans le Priabonien (-37 à -31 Ma), anciennement appelé Ludien. Ces deux formations de gypse se sont mises en place dans un contexte de régression marine et dans un paléo environnement de type tropical permettant l'intense évaporation nécessaire à la précipitation des roches évaporitiques, la France se trouvant à cette époque à 35° de latitude, contre 25° aujourd'hui.

Parmi quatre échantillons étudiés, deux sont issus de sondage carottés dans le lutétien supérieur et deux d'une carrière en activité dans les masses du Priabonien. Parmi ces échantillons de carrière, l'un provient en base de la première masse du gypse et l'autre de la seconde masse dans sa partie sommitale (voir ci-après). L'activité extractive se faisant sans taille prédéterminé, l'échantillonnage a été fait par récupération de blocs sur les différents paliers d'extraction. Il n'a ainsi pas été possible de sélectionner des niveaux précis ou de procéder à une étude poussée du front de taille pour situer nos blocs à leur emplacement exact dans la formation.

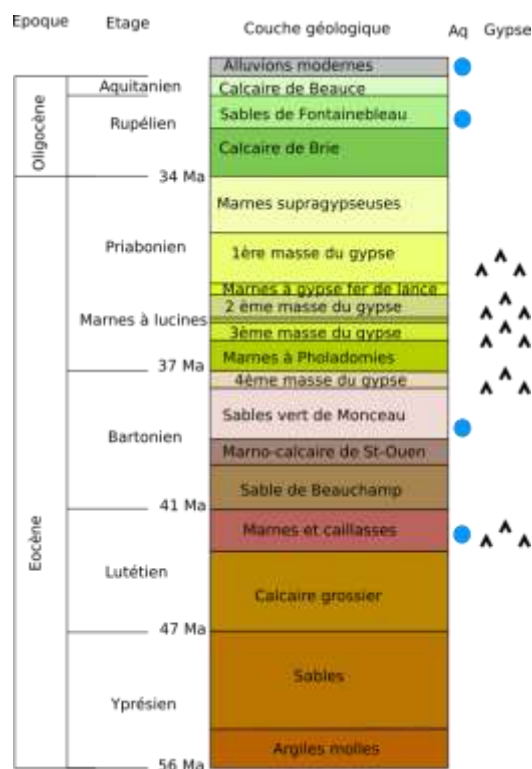


Figure 76 Log géologique simplifié et localisations des gisements de gypses en Ile-de-France. Aq : niveau aquifère. Modifié d'après (Zaier et al., 2021) et données de la BDLISA.

### a) Gypse des marnes et caillasses du Lutétien

Ces strates se sont déposées dans la phase finale du Lutétien (- 47 à -40 Ma). Il s'agit de dépôts mis en place lors d'une vaste régression marine du centre du bassin parisien. Le climat tropical, malgré une pluviométrie importante, a permis la mise en place de bassin évaporitique (Toulemont, 1986). Le réseau topographique avec ce recul a mis en place des zones de lagunes au sein de vastes dépressions. Dans ces creux se sont retrouvés piégés des volumes d'eau qui, avec le climat chaud, se sont évaporés générant la précipitation de gypse. La paléogéographie permet ainsi d'établir deux espaces lagunaires de dépôt (Figure 77). Ces dépôts présentent dans leurs compositions isotopiques (notamment en strontium Sr) des tendances d'alternance entre milieu lacustre et palustre.

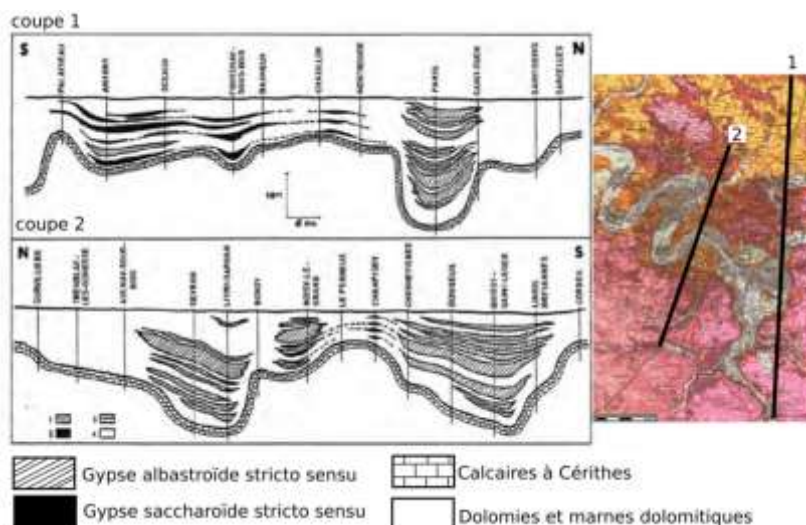


Figure 77 Profil géologique synthétique du Lutétien supérieur du centre du bassin parisien (Toulemont, 1986)

Le gypse du Lutétien n'est pas affleurant et est connu par l'analyse de sondages. Le gypse n'est pas continu sur l'ensemble de la formation des marnes et caillasses. Il se rencontre dans les zones où les marnes et caillasses sont les plus épaisses (Figure 78), suite à l'évolution et l'altération de ces couches (Toulemont, 1987; Dumont, 2021). Une épaisseur minimale de 10 à 15 m de marnes et caillasses est nécessaire pour observer clairement des bancs de gypse avec une épaisseur importante.

Cette relation entre les épaisseurs de gypse et de marnes et caillasses trouve son origine dans le contexte des dépôts, le gypse étant une roche évaporitique. Le gypse se dépose principalement dans les paléo-talwegs (voir glossaire). L'érosion du gypse s'effectue initialement à sa limite d'extension, là où le contact avec une eau sous saturée est le plus fréquent. Cette dissolution réduit ainsi l'aire de présence du gypse. Ce processus tend également à dissoudre préférentiellement le gypse à l'altitude supérieure où il est présent. Ainsi le gypse se trouve majoritairement dans les zones de dépression topographique, dans les zones où il a été préservé.

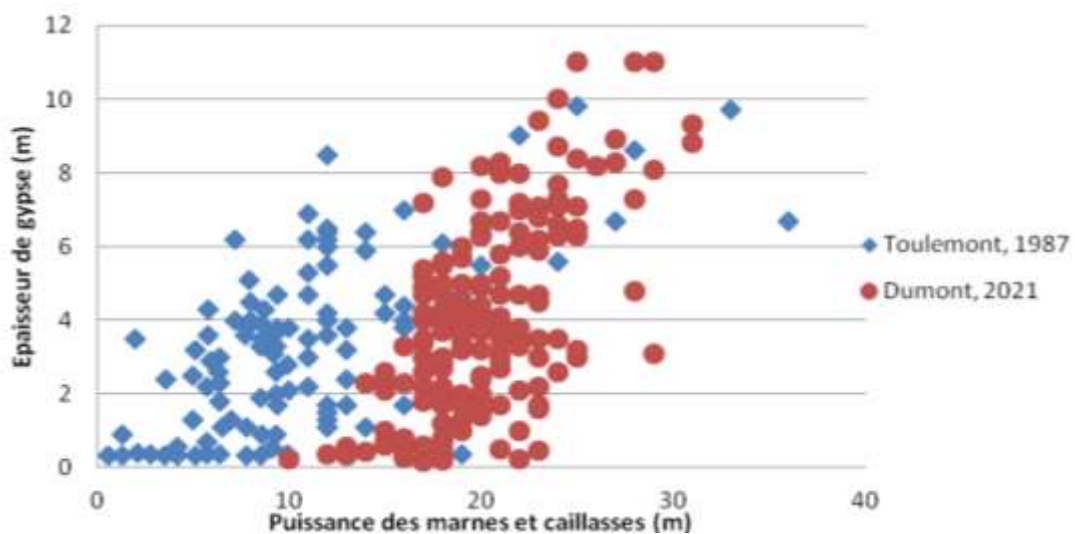


Figure 78 Relation entre les épaisseurs de couches de gypse et les épaisseurs des marnes et caillasses (Dumont, 2021)

Les masses de gypse du Lutétien se sont ensuite partiellement dissoutes à travers les époques. Leur dissolution active est contrôlée par les conditions environnementales à l'origine de la variation des niveaux aquifères. Les masses de gypse peuvent ainsi être immergées et subir une dissolution ou être en contact avec l'eau de façon irrégulière en zone vadose.

Sur les limites des extensions gypseuses, de nombreux faciès (voir glossaire) de substitution indiquent une altération précoce du matériau. On retrouve ainsi des faciès gypseux avec la présence de dolomite, silice et riche en calcaire épigénétique c'est-à-dire résultant d'un cours d'eau qui a érodé la couche supérieure (Toulemont, 1970, 1981, 1987). La dissolution s'est produite de manière régressive de la périphérie vers le centre des couches gypseuses (Figure 79). En périphérie, la formation gypseuse est en effet plus facilement soumise à des circulations hydriques sous saturées et donc agressives. C'est aussi dans ces zones que la formation gypseuse est la moins épaisse. Ces zones sont donc les premières touchées par le phénomène de dissolution (Figure 79 zone IIIb et IIIa). L'eau partiellement chargée va ensuite s'écouler vers le centre des dépôts en se saturant (zone II), ce qui inhibe la dissolution au centre de la dépression (zone I).

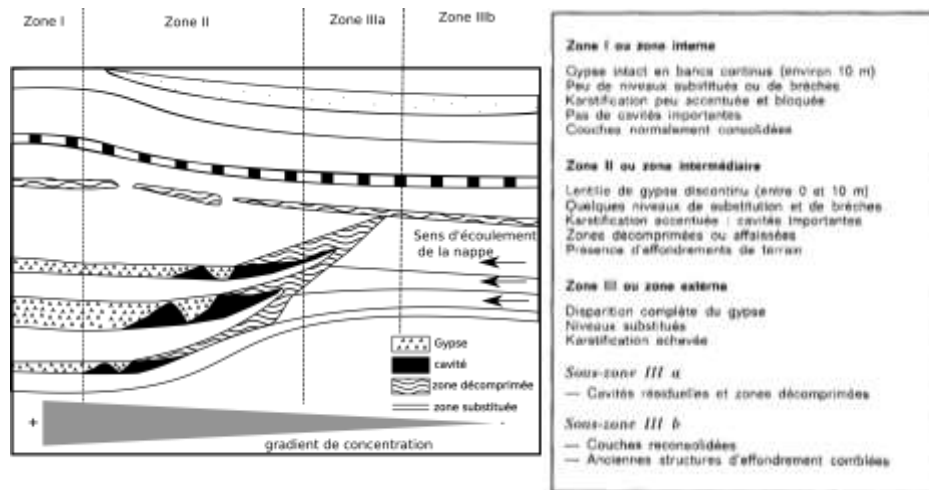
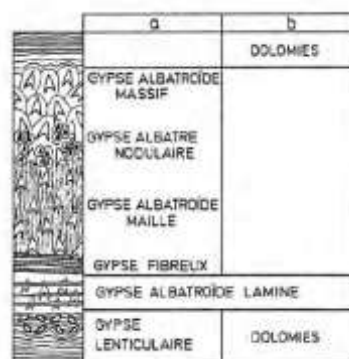


Figure 79. Localisation de la dissolution dans le gypse des marnes et caillasses (Toulemont, 1974)

Les morphologies rencontrées dans le gypse lutétien sont essentiellement des formes de gypse massif, blanc et homogène de faciès albaströïde. De l'anhydrite est également repérée. La base de la masse gypseuse apparaît avec un faciès saccharoïde (Figure 80). Toulemont (1986) parle d'une forme de gypse saccharoïde avec localement une forme micro-saccharoïde sans cohésion et d'aspect farineuse. Ces cristaux sont lenticulaires et de taille homométrique ( voir glossaire) entre 30 et 50  $\mu\text{m}$ . Cette description semble correspondre au faciès nommé « matriciel » par Zaier (2021) et dont nous avons repris l'appellation pour cette thèse. L'observation de micro grains d'anhydrite au sein des macro cristaux de calcite est le signe d'une déshydratation puis d'une réhydratation des masses gypseuses.



a : structure et faciès gypseux diagenétiques albaströïde

b : Faciès sédimentaire

Figure 80 Log stratigraphique des gypses du Lutétien supérieur (Toulemont, 1986)

Les marnes et caillasses sont actuellement un niveau aquifère dans lequel la dissolution peut être active localement. La présence de paléokarst y est attestée et décrite par plusieurs auteurs (Toulemont, 1970, 1981, 1987; Salomon, 2006; Bigot, 2010).

### b) Gypse albaströïde

Le gypse albaströïde est issu d'un sondage carotté réalisé dans le cadre du Grand Paris Express. Le sondage utilisé porte la référence « PSM-AVP-SC4244 » dont un extrait des données de forage en reporté en annexe II.2.B. Les éprouvettes sont obtenues par re carottage en diamètre 50 mm du sondage initial. L'élancement de 2 n'a pu être obtenu pour l'ensemble des échantillons, les blocs étant fortement fracturés. Les échantillons proviennent des Marnes et caillasses du lutétien supérieur à plus de 40 m de profondeur. Les éprouvettes présentent un aspect blanc, massif et compact, sans porosité apparente (Figure 81). Ce faciès albaströïde correspond à celui décrit par Toulemont (1986) et ayant subi une phase d'anhydritisation précoce.

Le faciès albaströide a été défini comme un gypse blanc, d'aspects massifs. Ces cristaux sont centimétriques, compacts et sans délimitation nette. Il ne présente pas de porosité apparente à l'œil.

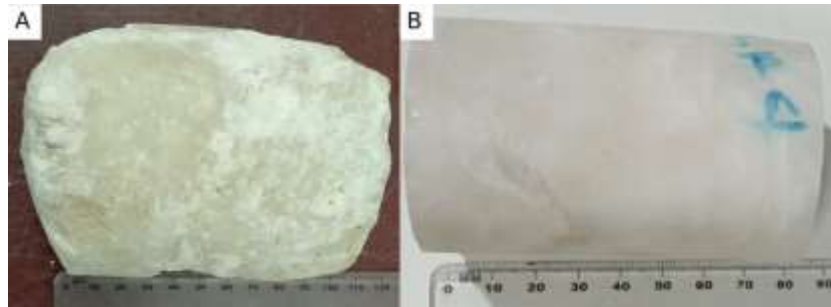


Figure 81 A : Échantillon de gypse albaströide du sondage PSM-AVP-SC4244. B : Éprouvette d obtenue par re carottage

### c) Gypse fer de lance

Le gypse fer de lance est obtenu à partir d'un sondage réalisé dans la région parisienne dans les masses et marnes du gypse (Priabonien). Le forage initial a été effectué pour les travaux du Grand Paris Express et porte la référence « RSB-AVP-SC04200 » (Figure 82A). Une partie de la coupe du forage est fournie en annexe II.2.C. Les éléments utilisés proviennent d'un banc de gypse fer de lance entre 17,7 m et 18,4 m de profondeur.

Les éprouvettes ont été obtenues (Figure 82B) par sciage et re carottage en diamètre 50 mm des sondages carottés. Elles sont de couleur ocre et se composent d'un emboîtement de cristaux à macle « fer de lance » pluri-centimétrique.

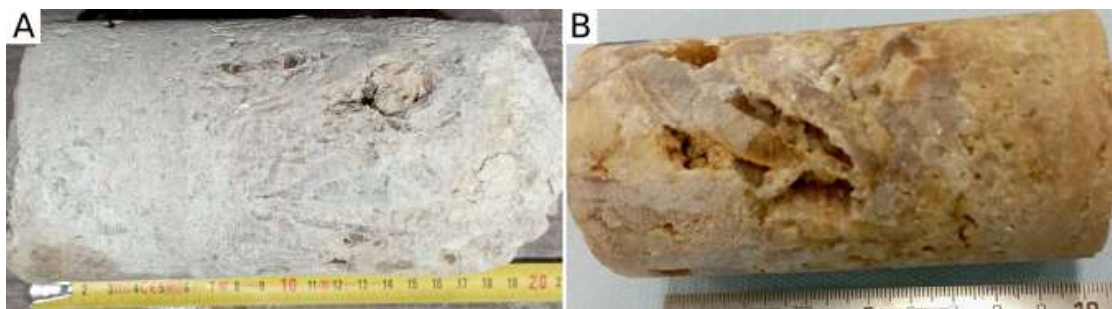


Figure 82 A Échantillon de gypse fer de lance du sondage RSB-AVP-SC04200. B Éprouvette d obtenue par re carottage

### d) Les masses et marnes du gypse du Priabonien

#### i. Les masses et marnes du gypse

Il s'agit des plus importants dépôts de gypse dans la région parisienne avec un ensemble de 4 masses. Ces masses se superposent de la première qui est la plus récente à la quatrième la plus ancienne, avec des épaisseurs moyennes de 10 à 20 m pour la 1<sup>ère</sup> masse, de 4 à 8 m pour la 2<sup>ème</sup>, de 5 m pour la 3<sup>ème</sup> et de 1 à 2 m pour la 4<sup>ème</sup> (Toulemont, 1970; Vachat, 1982; Zaier, 2021). Les masses s'intercalent dans des bancs marneux pouvant inclure des nodules de gypse de taille plus ou moins importante (Figure 76). Cet ensemble géologique s'insère lui-même entre les marnes infra-gypseuses (marnes à *Pholadomyes*) et les marnes supra-gypseuses (marne bleue d'Argenteuil et marne de Pantin).

Le contexte de dépôt en milieu peu profond avec une forte évaporation induit dans le cas de la formation des masses de gypse une forte variabilité latérale dans les épaisseurs de dépôt. Le courant et la topographie du bassin influent également sur le renouvellement en eau du bassin ce qui peut augmenter l'épaisseur des couches et la forme des cristaux précipités. De même

que l'épaisseur variable, les 3 et 4<sup>ème</sup> masses ne sont pas toujours présentes dans les séries observées (Toulemont, 1970; Vachat, 1982; Du Mouza, 1975; Massieu, 1992). Comme pour le Lutétien, les dépôts se produisent essentiellement dans des zones de cuvette en couches continues sur des aires variables mais pouvant atteindre des épaisseurs importantes. Le gypse étant une roche soluble et de faible dureté sur l'échelle de Mohs (soit une valeur de 2 sur 10), le gypse priabonien est toujours présent essentiellement dans des buttes témoins (glossaire).

## **ii. Origine du gypse Priabonien**

Dès les premières observations du 18<sup>ème</sup> siècle, un débat sur la mise en place du gypse (-37 à -31 Ma) (ancien Ludien) dans la région de Paris a eu lieu. Il est en effet rare d'observer des masses si épaisses et si étendues de gypse pouvant se déposer dans un contexte de précipitation de type lagunaire et de transgression (glossaire) peu importante, même avec des apports d'eau successifs. Dans ce débat sur l'origine des sulfates ayant conduit à la mise en place des masses de gypse, deux hypothèses se sont affrontées. La première hypothèse assez « classique » met en jeu des apports réguliers d'eau du milieu marin dans la zone lagunaire. La seconde hypothèse propose un apport via le paléo-réseau hydrographique du Priabonien. Mieux connaître cette origine peut apporter des éléments expliquant la composition minéralogique des différents faciès de gypse associés au comportement au contact de l'eau des matériaux décrits dans ce travail de thèse. L'hypothèse de l'origine marine est soutenue par certains éléments cristallogéniques et morphologiques, l'analyse des ratios élémentaires chlore/brome (Cl/Br) donnée par Sabouraud (1974) sur des saumures initialement piégées dans les lacunes de cristallisation dans les niveaux correspondant à la 2<sup>ème</sup> masse. Le milieu marin est le probable milieu de cristallisation. Les résultats de cet auteur sur 211 prélèvements donnent des teneurs de NaCl moyen de 18%, pour 23% pour des gypses synthétiques d'eau de « mer classique » et un ratio Cl/Br de 233, contre 300 pour l'eau de mer et 1000 dans les rivières actuelles. Cette teneur en brome est dans ce cas un indice de l'origine marine de cette masse. De plus, en présence de NaCl lors de la précipitation, les grains de gypse tendent à développer des formes « ovoïdes » (comme le gypse saccharoïde) ce qui est le cas des éléments de la 2<sup>ème</sup> masse (Jaworska, 2012; Reiss et al., 2021). D'après Wyns (2014), les éléments chimiques constitutifs de ces niveaux sont issus d'apports souterrains post minéralisation des auréoles sédimentaires ou du socle et pour une faible part d'origine organique.

La seconde hypothèse repose sur la dissolution des masses gypsifères de l'Est de la France qui auraient ensuite été amenées dans la région parisienne par des cours d'eau. Des zones d'accumulation telles que des étangs ou des lacs proches du milieu marin permettent alors la précipitation des masses de gypse. Cette hypothèse permet d'expliquer de manière simple la présence de masses d'épaisseur métrique à décamétrique avec des hauts niveaux de pureté et une continuité importante. Les gypses marins ont en effet le plus souvent de faible épaisseur avec des intercalations de marnes et de calcaire. Un des principaux arguments en faveur de l'origine continentale est l'épaisseur continue des couches de gypse du Ludien. Pour former une couche d'un millimètre de gypse à partir d'une saumure de composition moyenne en considérant les concentrations de l'eau de mer, il se forme conjointement 10 à 20 cm de chlorure de sodium (halite). Il faudrait ainsi pour expliquer les 17 à 20 m de la première masse, observer des couches d'halite de 2 à 3 km d'épaisseur (Fontes (1974)), ce qui n'est pas le cas. Plus encore, aucune intercalation d'halite n'est trouvée dans les masses gypseuses.

Nous citerons également les travaux de (Renard, 1974) qui s'est intéressé aux teneurs en éléments traces (Sr, Na, K, Mg, Zn) dans les calcaires de Saint-Ouen et les masses du gypse. Il obtient les résultats donnés dans le tableau ci-après (Tableau 16). Ces éléments traces sont, d'après ces travaux, des éléments informatifs sur les conditions de salinité du milieu lors de la

sédimentation de ces éléments. Ces valeurs tendent à indiquer des milieux continentaux à partir du milieu des calcaires de Saint-Ouen avec des variations pouvant correspondre à des apports marins ponctuels.

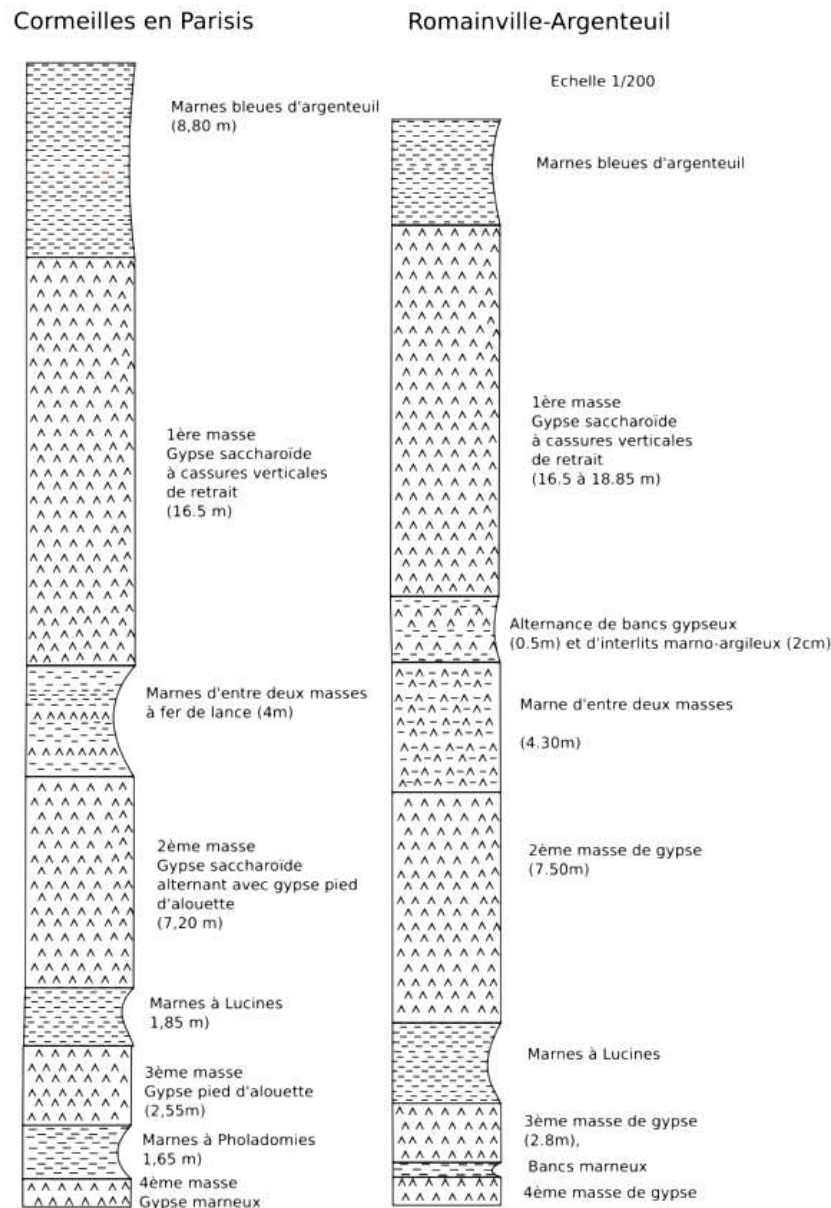


Figure 83 : exemple de logs géologiques des masses et marnes du gypse en Ile-de-France (Du Mouza, 1975)

Des analyses des isotopes du soufre dans les diverses masses du gypse ont été effectuées par (Bosch et al., 1974) et comparent la teneur en  $^{34}\text{S}$ , isotope lourd du gypse, par rapport à son isotope courant, le  $^{32}\text{S}$ . Il interprète ces résultats à partir des travaux de (Thode et al., 1961; Thode and Monster, 1965) qui ont déterminé les ratios isotopiques du soufre en fonction de l'origine géologique et de sa variation dans les eaux océaniques des temps géologiques. D'après ces résultats, les évaporites ont une tendance à l'enrichissement en isotope lourd (de +5 à +4‰). Au Ludien, le ratio  $^{34}\text{S}/^{32}\text{S}$  était d'un enrichissement d'environ de +19‰. Les résultats obtenus pour les gypses parisiens de cet âge sont de même ordre de grandeur. La Première masse apparaît comme « appauvrie » par rapport au milieu marin de cette époque avec un ratio de +15,6‰. Cette valeur est proche de celle du Trias. Ils déterminent ainsi un milieu franchement marin pour les masses 2, 3 et 4. La première masse aurait ainsi un apport en gypse continental plus net.

Tableau 16 Quantification des éléments traces du Ludien à partir de sondage carotté. D'après (Renard, 1974)

Niveau géologique		Teneurs moyennes en ppm				
		Sr	Na	K	Mg	Zn
Marnes supra-gypseuses		651	759	701	6470	9,39
Haute masse du Gypse (1ère)		298	147	210	1358	2,86
marne d'entre deux masses	sommet	436	402	571	2440	2,05
	milieu	842	438	718	2642	2,20
	bas	679	428	689	2561	2,11
2ème Masse du Gypse		298	164	186	1488	3,99
Marnes à Lucines		505	285	425	2019	3,65
3ème Masse du Gypse		236	96	116	685	3,79
Marnes à Pholadomies		non recueillies				
4ème masse du Gypse (les échantillons dolomitiques sont exclus)		200	85	113	657	2,3
Calcaire de Saint-Ouen	Haut	2370	1957	607	4743	6,06
	Bas	939	780	152		2,54

**e) Gypse saccharoïde pur**

Le gypse saccharoïde provient d'un bloc de gypse exploité dans la deuxième masse des marnes et masses du gypse du Priabonien (-37 à -31 Ma). Le bloc provient d'une carrière située en Ile de France à proximité de Vaujours (93) (Figure 84).

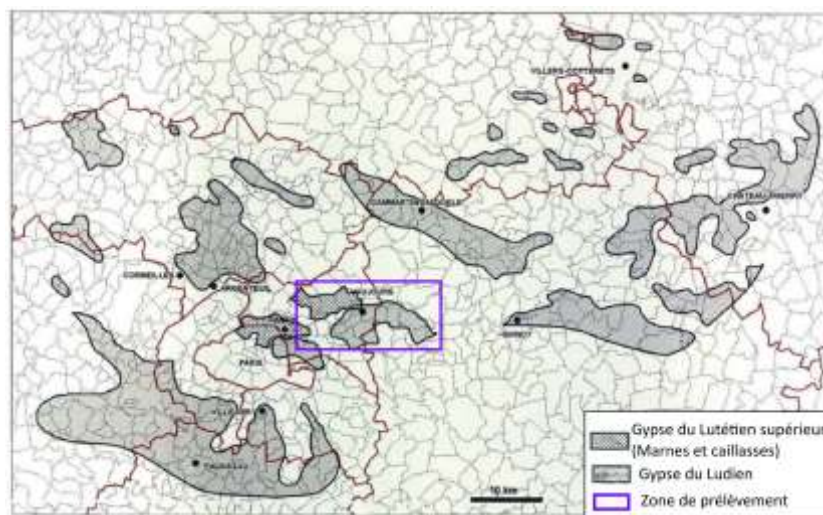


Figure 84 :Extension des masses de gypse du Priabonien Source : Daupley et al., (2015)

Le bloc a été fourni sans pouvoir pénétrer sur le site ni obtenir d'information particulière sur sa localisation dans le front d'exploitation (banc...), seulement qu'il provient de la partie haute de la deuxième masse. Les éprouvettes ont été obtenues par carottage en diamètre 50 mm pour une hauteur de 100 mm. Les échantillons sont de couleur ocre et de type saccharoïde



(des éléments granulaires arrondis de faibles dimensions). L'aspect et la texture sont homogènes pour l'ensemble des échantillons (

Figure 85). Ils sont référencés « GSII ». Il s'agit d'un gypse saccharoïde comme défini précédemment mais sans présence d'interstratification.



Figure 85 Éprouvette de gypse saccharoïde pur « GSII »

La multiplication des essais a nécessité un second approvisionnement au sein de la carrière. Le site a cette fois pu être visité pour la sélection des blocs (Figure 86). Toutefois l'exploitation par arrachement à la pelle mécanique, limite encore une fois la précision pour localiser les blocs retenus dans l'affleurement. Il a ainsi été retenu deux blocs à deux hauteurs d'exploitations différentes. Le bloc basal est référencé « B2GS » et le supérieur « B2HGS ». Les éprouvettes obtenues présentent les mêmes caractéristiques de texture et de couleur. Le bloc inférieur apparaît comme moins poreux au touché, ce qui s'est vérifié lors de leurs caractérisations. La porosité à l'eau pour le bloc B2GS est de 2,3% contre 12,8% pour le B2HGS. La caractérisation du premier bloc a donné une porosité moyenne de l'ordre de 10,5%. Il a été privilégié l'utilisation des éprouvettes B2HGS en complément car plus proche des éprouvettes utilisés en début de travaux. Les éprouvettes B2GS ont été utilisés pour des essais de perméabilité et de fluage pour des raisons qui seront discutés dans le chapitre 3, ainsi que la caractérisation des éprouvettes utilisés.



Figure 86 Front de taille dont sont issus les blocs du Priabonien

#### f) Gypse matriciel

Le gypse matriciel provient du même site d'exploitation que le faciès précédent mais est issue de la première masse du gypse (Figure 86). Comme pour le gypse saccharoïde pur un premier bloc référencé « GSI » a été obtenu sans information sur sa localisation autre que la base de la première masse. Le bloc carotté a permis l'obtention d'éprouvette de couleur grise à éléments micrométrique d'aspect compact. Des cristaux de gypse millimétriques sont inclus dans cette masse en densité variable selon les éprouvettes (

Figure 87). Le faciès matriciel est défini ici comme un gypse saccharoïde dont l'espace intergranulaire est majoritairement occupé par des cristaux de gypse micrométrique, donnant un aspect de matrice sédimentaire à l'ensemble.

Un second approvisionnement a également été effectué avec le prélèvement de deux blocs à différentes hauteurs dans la 1<sup>ère</sup> masse. Le bloc inférieur référencé B1BGM et le bloc supérieur référencé B1GM. Leur caractérisation n'a pas révélé de fort écart, notamment la porosité à l'eau avec des valeurs respectivement de 8,2 et 9,6 %. Ces valeurs sont similaires au premier bloc GSI (9,7%).

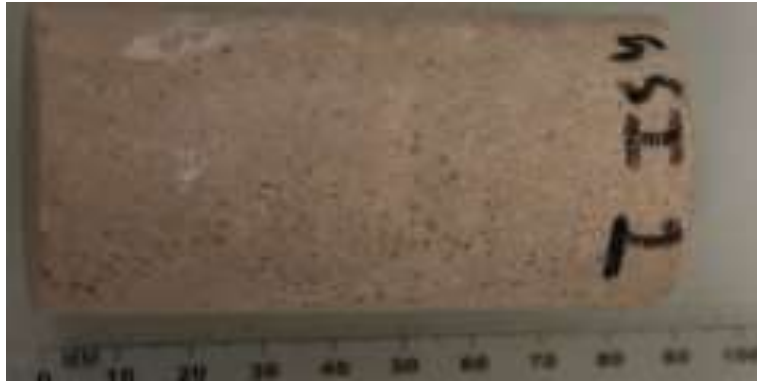


Figure 87 Éprouvette de gypse matriciel

Lors de la récupération des blocs, des conduits parakarstiques ont été observés en base de la première masse (Figure 88) (assez loin de la zone de prélèvement). Ces conduits d'environ 50 cm de haut pour une dizaine de centimètre de large en moyenne sont fortement comblés par des éléments argilo-limoneux. Les conduits sont parallèles et s'étendent sur environ 15 m de avec des espacements de quelques dizaines de centimètres entre deux conduits.



Figure 88 Photographie des conduits karstique observés dans la carrière.

## **B. Méthodes et protocoles**

### **I. Identification et quantification minéralogique**

#### ***1) Diffraction des rayons X***

La caractérisation des matériaux gypseux a été réalisée par diffraction de rayons X couplé à la méthode Rietveld pour identifier et quantifier les phases minérales présentes initialement dans les échantillons en mettant en évidence également leur variabilité notamment lors du suivi de la minéralogie des éprouvettes soumises à une percolation d'eau.

La diffractométrie des rayons X consiste à l'émission d'un faisceau d'onde généré par excitation d'un filament de cobalt (Figure 89). Ce faisceau orienté sur un échantillon réduit en poudre sera diffracté par les plans cristallins des minéraux présents dans la poudre désorientée placée dans un porte échantillon (front loading).

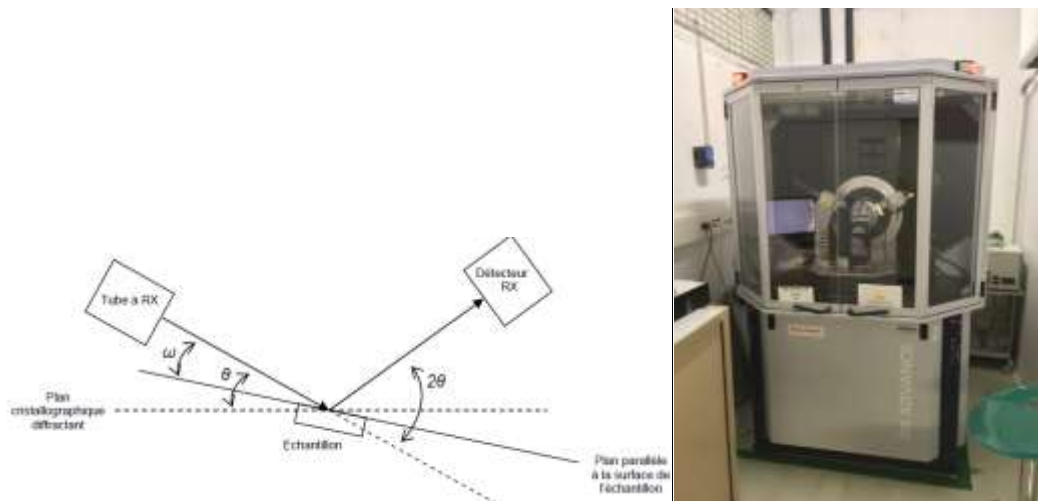


Figure 89 Principe de la diffractométrie par rayon X et photo du diffractomètre D8 de Drücker.

Le faisceau incident issu de l'anode au Cobalt ( $\lambda = 1.78\text{\AA}$ ) et le détecteur Lynx eye (angle d'ouverture de  $3^\circ$   $2\theta$ ) réceptionnant le faisceau diffracté bougent simultanément (configuration théta- théta) dans l'espace d'un angle théta. L'angle du récepteur sera de 1 fois l'angle de l'émetteur. Nous parlerons ainsi d'analyse en  $2\theta$ . Les plans diffractent si la loi de Bragg (éq 2.B.1) est vérifiée.

$$n \lambda = 2d \sin\theta \quad (\text{éq 2.B.1})$$

Avec  $n$  : ordre de diffraction (nombre entier),  $\lambda$  : longueur d'onde des rayons X ( $\lambda = 1.78 \text{ \AA}$  pour une anode au cobalt),  $d_{hkl}$  : distance entre 2 plans cristallins (hkl),  $\theta$  : angle du faisceau

Les essais sont réalisés sur des échantillons broyés à  $80 \mu\text{m}$  et l'appareil est un Bruker D8 Advance avec les paramètres suivants : Tension : 35kV, Intensité : 40 mA, angle  $2\theta$  balayé : de  $3$  à  $80^\circ$   $2\theta$ , Vitesse de rotation de l'échantillon sur lui-même (spinner) : 30 rpm, pas de :  $0.01^\circ 2\theta$ , durée d'acquisition par pas : 1 sec/step. Le faisceau incident n'est pas monochromateur mais constitué de plusieurs longueurs d'onde issue de l'anode au cobalt avec  $k\alpha_1 = 1.78\text{\AA}$  (raie principale),  $k\alpha_2 = 1.79\text{\AA}$  (très proche de la  $k\alpha_1$  ce qui entraîne un dédoublement des pics bien visibles aux angles élevés) et  $k\beta = 1.62\text{\AA}$  qui est arrêtée par un filtre Fer.

L'exploitation des résultats est faite à l'aide du logiciel EVA (Bruker) pour l'identification et du logiciel TOPAS (Bruker) utilisant la méthode Rietveld (Rietveld, 1969) pour la quantification. La base de données utilisée est ICDDpdf2 (2021). A chaque pic correspond une distance  $d$  entre 2 plans cristallins et un ensemble de plan cristallin est associé à un minéral. La position des pics en  $2\theta$  couplée à des intensités relatives permet d'identifier une phase donnée. La caractérisation minéralogique a été complétée par une analyse chimique élémentaire des éléments majeurs et mineurs par ICP OES et ICP MS (Service d'Analyse des Roches et des Minéraux (SARM), Nancy).

## 2) Pétrographie

Pour compléter les observations DRX, des lames ont été réalisées par la société Thinksectionlab (Toul, France) avec une procédure de sciage à l'huile pour minimiser les

effets d'altérations sur le gypse. Afin de mieux visualiser la porosité, une coloration bleu a été inclus dans la préparation de la résine. L'observation est faite sous un microscope optique polarisant, Nikon optiphot2-POL (Figure 90) avec des grossissements allant de x100 à x500 en mode lumière polarisée non analysée (LPNA) et lumière polarisée analysée (LPA). Le microscope est relié à un ordinateur possédant le logiciel Archimède. Ce logiciel permet l'acquisition numérique des clichés ainsi que d'étudier de manière quantitative la taille des minéraux (grains), leur nombre (comptage) et la porosité des lamelles de gypse. Des traces d'altérations ont également pu être mises en évidence.



Figure 90 Microscope optique Nikon utilisé

## II. Pétrophysique

Il est ici présenté les protocoles de l'ensemble des essais pour déterminer la porosité et ses composantes, l'imbibition capillaire, la perméabilité et les méthodes de mesures du module d'élasticité utilisés dans cette étude.

### 1) *Classification de la porosimétrie*

La porosité se définit comme le volume de vide pouvant être occupé par un gaz (l'air, le méthane ...) ou un fluide (l'eau, le pétrole....). dans une roche (Foucault et al., 2014). L'étude du milieu poreux nécessite de prendre en compte de nombreux paramètres pour l'appréhender comme le volume de pore, ses dimensions, sa connectivité, sa tortuosité.... Ses facteurs donnent à la roche une structure poreuse variable facilitant ou non l'écoulement d'un fluide. Cette structure poreuse à 4 principaux critères définissant sa géométrie (Tomachot, 2002) :

- Le volume de porosité,
- La taille des pores,
- La rugosité et la morphologie de la porosité,
- Localisation de la porosité dans le volume (intra / intergranulaires).

La porosité peut être considérée de manière simplifiée comme une succession d'objet (les pores, qui représentent la majorité du volume) reliés par des capillaires, qui détermineront les propriétés hydrauliques du matériau.

Ce volume prend la forme d'une succession de pore reliés par des connexions plus ou moins nombreuses et de dimensions variables (Bousquie, 1979; Mertz, 1991; Rousset-Tournier, 2001; Tomachot, 2002, Zinszner 1980). La structure de ce réseau peut être étudiée par diverses méthodes quantitatives ou qualitatives de manières directes ou indirectes. Chacune de ses méthodes est fonctionnelle pour une gamme de dimensions de pore spécifique (Figure 91).

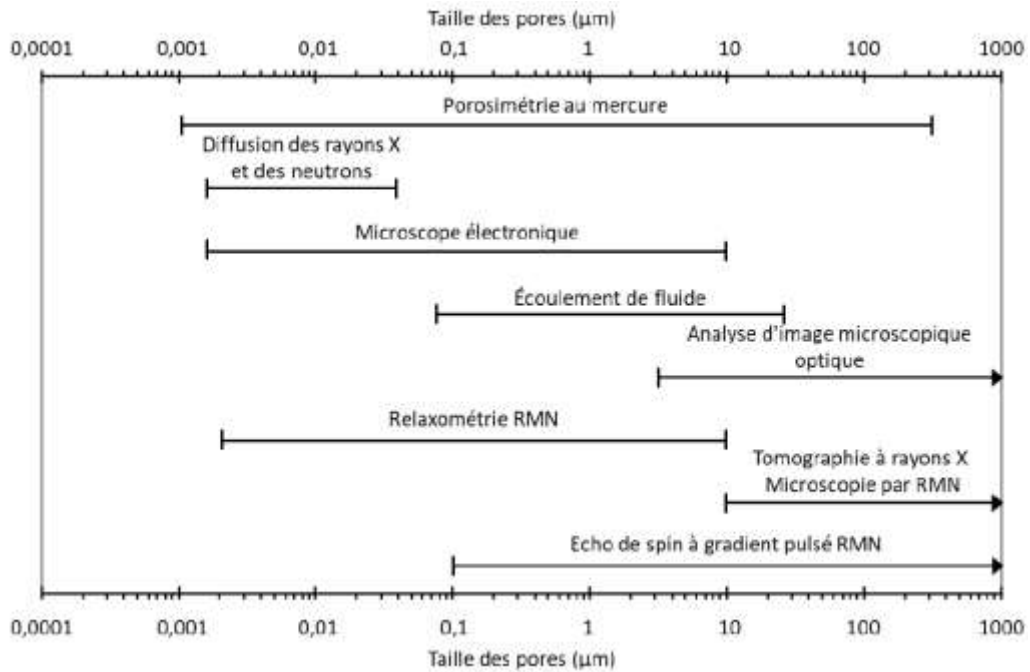


Figure 91 : Échelle de caractérisation des réseaux poreux selon la méthode considérée. (Junique, 2021)

Pour chacune de ces techniques, des subdivisions en macroporosité, microporosité et nanoporosité peuvent être délimitées. Ces délimitations sont variables en fonction des auteurs et de leurs matériaux d'études (Tableau 17). Nous suivons dans ce travail la même classification que Junique, (2021). Il base la distinction entre macro et microporosité à 15 µm de diamètre soit la taille de pore accessible en condition ambiante via la porosimétrie mercure, ce qui est similaire à la distinction proposée par (Mertz, 1991) qui l'exprimait en rayon. La nanoporosité est quant à elle inférieure à 1 µm de diamètre, soit la limite de détection en porosimétrie mercure.

Tableau 17 Distinction des types de porosités en fonction du rayon pour différents auteurs et des méthodes utilisées. modifié d'après (Junique, 2021) MO : microscopie optique Hg : porosimétrie mercure

méthode		Infra pore	limite (µm)	Micro porosité	Limite (µm)	Macro porosité	Source
MO	Zinszner, 1980		-		10		(Tomachot, 2002)
HG	Mertz, 1991		-		7,5		
MO	Choquette et Pray 1970		-		125		
MO	Bousqié, 1979		-		5	(Bousquie, 1979)	
HG			0,01		1		
HG	Cambarnosu et Marle, 1965		-		0,01		
HG	Goni,Ragot et Sima, 1968		0,03		7,5		
MEB	Pittman, 1971		-		0,5		
	International Union of Pure and Applied Chemistry. (IUPAC)		0,002		0,05	(Junique, 2021)	
MO	Junique, 2021		1		7,5		
	Fogue-Djombou et al., 2019		0,1		10		

En plus d'une classification en fonction de ces dimensions, la porosité est également décrite en fonction de sa capacité à accueillir de l'eau (Figure 92) (Bousquie, 1979; Tomachot, 2002; Auvray, 2003; Vigroux, 2020). La porosité totale (Nt) est le volume total de vide accessible à

l'eau après que le solide ait été soumis à un pompage sous vide. La porosité accessible à l'eau ( $N_{48}$ ) est le volume de vide naturellement saturable en condition ambiante. La porosité piégée ( $N_p$ ) est le volume de pore non accessible à l'eau en condition ambiante. En condition ambiante, ce volume représente le fluide moins mouillant qui sera piégé. La porosité porale (ou primaire) est la part de pores directement liés à la matrice rocheuse qui n'est pas parfaitement cimentée. La porosité fissurale (ou secondaire) est la porosité issue de l'évolution de la roche via la fracturation. Et la porosité occlue est une porosité intragranulaire sans contact avec les autres types de porosité.

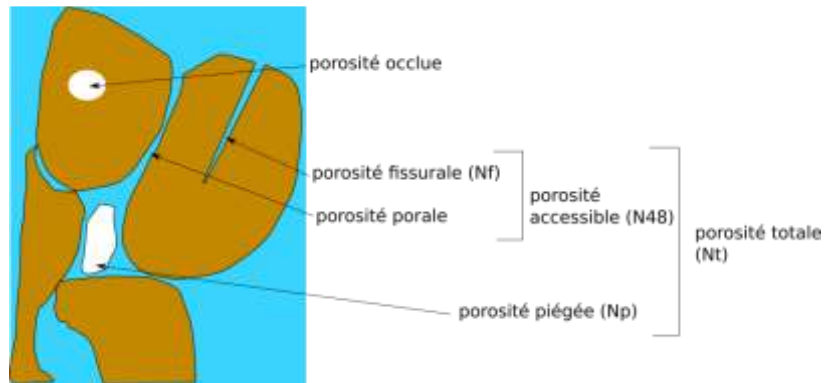


Figure 92 : schéma des différents types de porosité

Afin de ne pas générer de dissolution pendant nos essais, nous avons utilisé de l'eau préalablement saturée en gypse dissous. Des fragments de gypse ont été introduits dans des réservoirs remplis d'eau pure ( $15\text{m}\Omega/\text{cm}$ ). La dissolution a été effectuée pendant 48 H sous agitation et la saturation contrôlée avec une mesure conductimétrique. ( $2500\ \mu\text{S}/\text{cm}$  à  $22^\circ\text{C}$ ).

## 2) Porosimétrie à l'eau

### a) Détermination de la porosité totale ( $N_t$ )

La porosité totale correspond à l'ensemble de la porosité qui sera accessible à l'eau sous vide, soit en régime monophasique. L'essai est régi par la norme NF 1936 (AFNOR, 2007), elle permet également d'obtenir la masse volumique du matériau.

Les échantillons sont préalablement séchés dans une étuve à  $40^\circ\text{C}$ . Cette température permet d'éliminer l'eau des échantillons sans initier la déshydratation du gypse en anhydrite. Le protocole consiste ensuite à générer un vide sur les échantillons (préalablement pesés  $M_{\text{sec}}$ ) avec une pompe, pendant une période minimale de 24 heures. Notre système nous a permis d'atteindre  $12 \pm 5\ \text{mm Hg}$ .

Les échantillons sont ensuite immergés sans que le vide ne soit cassé. L'immersion se réalise en suivant l'ascension capillaire dans les éprouvettes et avec de l'eau dé gazéifiée. Les éprouvettes sont ensuite maintenues immergées 24 h à pression ambiante.

La porosité totale et la masse volumique sont ensuite déterminées à partir de la méthode de la triple pesée. Il s'agit en plus de la pesée initiale sèche  $M_{\text{sec}}$  d'effectuer une pesée hydrostatique ( $M_{\text{hyd}}$ ) et une pesée saturée ( $M_{\text{sat}}$ ). La pesée hydrostatique consiste à peser l'échantillon saturé en condition immergée, la pesée saturée est une simple mesure de l'éprouvette saturée en condition ambiante.

La porosité totale est déterminée à partir de l'équation ci-dessous (éq 2.B.2) :

$$N_t = \frac{M_{\text{sat}} - M_{\text{sec}}}{M_{\text{sat}} - M_{\text{hyd}}} * 100 = \frac{V_v}{V_{\text{tot}}} * 100 \quad (\text{éq 2.B.2})$$

La masse volumique est quant à elle déterminée par l'équation suivante (éq 2.B.3)

$$\rho = \frac{M_{sec}}{(M_{sat} - M_{hyd})} * 100 \quad (\text{éq 2.B.3})$$

Avec  $N_t$  : porosité totale (%),  $M_{sat}$  : masse de l'échantillon saturée (g),  $M_{sec}$  : masse de l'échantillon sec,  $M_{hyd}$  : masse en pesée hydrostatique (g),  $\rho$  : masse volumique ( $\text{g}/\text{cm}^3$ ).

b) **Détermination de la porosité accessible ( $N_{48}$ ) et de la porosité piégée ( $N_p$ )**

Ces porosités sont déterminées à partir d'une immersion progressive en condition ambiante (régime biphasique), d'après la norme AFNOR B.10.513 (AFNOR, 1991). Les échantillons sont préalablement séchés et pesés  $M_{sec}$ . L'immersion se réalise ensuite dans un bac fermé afin de limiter les phénomènes d'évaporation. Elle se réalise de manière progressive (Figure 93) :

- La première heure avec de l'eau à  $1/4$  de la hauteur des éprouvettes,
- Puis 23 heures à la moitié de leur hauteur,
- Les 24h suivantes sont effectuées en immersion complète.

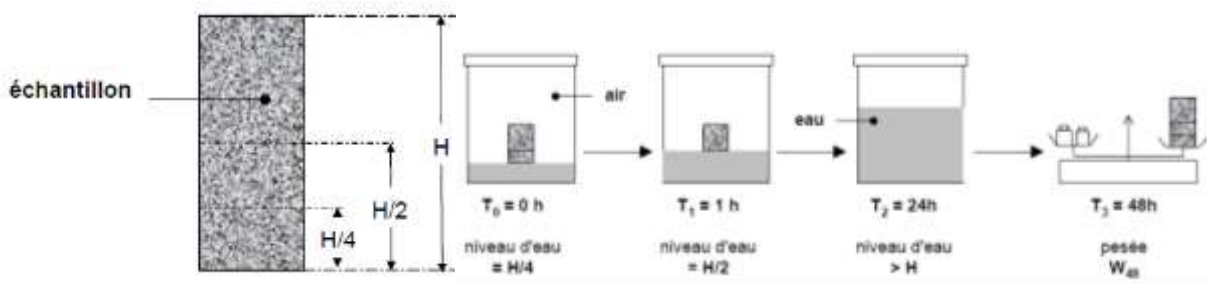


Figure 93 : Détermination de la porosité 48H. Rousset-Tournier, 2001

Il est ensuite effectué une pesée à l'état saturée ( $M_{48}$ ). La porosité accessible ( $N_{48}$ ) est ensuite déterminée à partir de l'équation ci-dessous (éq 2.B.4).

$$N_{48} = \frac{M_{48} - M_{sec}}{M_{sat} - M_{hyd}} * 100 \quad (\text{éq 2.B.4})$$

La soustraction de ce volume à la porosité totale ( $N_t$ ) permet de déterminer la porosité piégée (éq 2.B.5).

$$N_p = N_t - N_{48} \quad (\text{éq 2.B.5})$$

Cette porosité piégée correspond au volume de vide où restera contenu le fluide le moins mouillant (ici l'air) lors d'une saturation en condition ambiante. Ce piégeage se réalise à partir de 2 mécanismes (Bousquie, 1979).

- la rugosité et les impuretés à la surface d'un pore créant une succession de micropore et donc une conductivité plus importante sur la surface qu'au centre du volume (Figure94a).
- un « court-circuitage » d'un pore par un capillaire plus fin (Figure94b),
- L'indice d'Hirschwald ( $S_{48}$ ) peut également être calculé à partir des valeurs de porosité libre et totale (éq 2.B.6). Il traduit le taux de saturation maximale atteignable en condition naturelle.

$$S_{48} = \frac{N_{48}}{N_t} \quad (\text{éq 2.B.6})$$

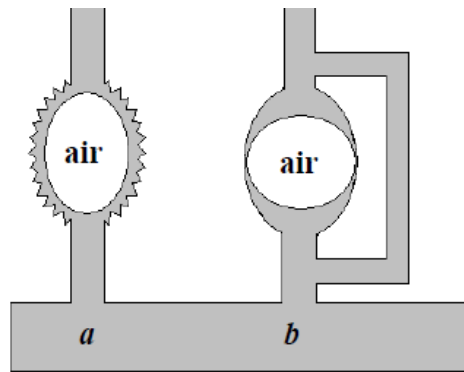


Figure 94 Mécanisme de piégeage de l'air par imbibition capillaire, a) par rugosité, b) par dérivation par (Bousquie, 1979), d'après (Rousset-Tournier, 2001)

Une fois la saturation par imbibition réalisée, l'air piégé va progressivement se diffuser à travers le fluide et conduire à atteindre la saturation totale. Toutefois, cette diffusion est un phénomène extrêmement lent. La porosité piégée est donc la résultante de la structure du réseau porale (Tomachot, 2002; Mertz, 1991) :

- vitesse d'imbibition,
- distribution des tailles de pore,
- tortuosité,
- Nombre de capillaire et leurs connexions aux pores.

c) **Détermination de la porosité fissurale ( $N_{\text{pore}}$ ) et de la porosité porale ( $N_{\text{fiss}}$ )**

Comme écrit précédemment, la porosité correspond au volume total de vide dans le matériau. Ces vides qu'ils soient accessibles ou non peuvent être issue de 2 processus. Le premier est la porosité associée aux pores qui apparaissent à la genèse de la roche. Elle peut évoluer en fonction des conditions mais reste répartie de manière homogène avec une structure plus convexe et sans orientation préférentielle dans l'espace. À l'inverse, la porosité fissurale se mettra en place avec l'évolution de la roche principalement dans des contextes de contraintes qui vont fissurer le matériau. Les fissures seront plutôt droites et de forme allongée et avec une orientation préférentielle dans 2 des directions de l'espace (Haffen, 2012).

À partir de la porosité totale et de l'indice de qualité (Iq), il peut être déterminé de manière graphique la part de porosité de chaque type (Figure 95). Cette méthode a été déterminée par (Tourenq et al., 1971). La détermination de l'indice de qualité est effectuée à partir de la vitesse de propagation des ondes P. Son obtention sera détaillée plus avant dans la partie décrivant la vitesse de propagation des ondes P.

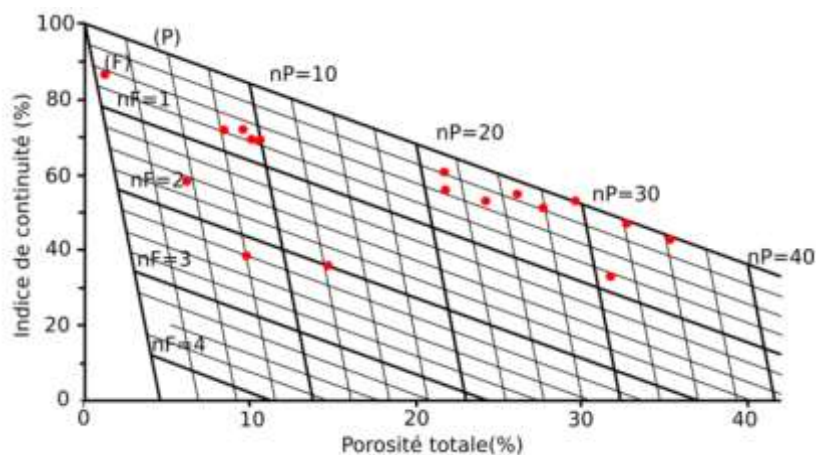


Figure 95 Exemple de détermination de la porosité poral et fissurale pour différents calcaire. D'après (Bousquie, 1979)



Le diagramme est obtenu par un maillage triangle établi à partir des segments F et P. Le segment F correspond à un cas où la porosité est entièrement dû à la fissuration, à l'inverse les points sur la droite P correspondent à une porosité 100% porale. Ce diagramme et les pentes de ces triangle constitutifs ont été calculés à partir de l'étude de roche de différentes nature (sédimentaire, magmatique...), puis altérées par une succession de palier de chauffage. Entre chaque palier, la porosité était déterminée. Ils ont ainsi établi la relation suivante (éq 2.B.7 et éq 2.B.8) :

$$I_c = 1 - A * n_{pore} - B * n_{fissure} \text{ avec } N_t = N_{pore} + N_{fissure} \quad (\text{éq 2.B.7})$$

A et B sont des constantes valant respectivement 1,6 et 22 (Tourenq et al., 1971). Ainsi,

$$n_p = \frac{i_c - 1 + B * n_t}{B - A} = \frac{i_c - 1 + B * n_t}{20,4} \quad \text{et} \quad n_f = n_{tot} - n_p \quad (\text{éq 2.B.8})$$

### 3) Porosimétrie mercure

L'essai de porosimétrie par intrusion de mercure est une mesure destructive sur des échantillons de quelques centimètres cubes. Il a été initié dès le 19<sup>ème</sup> siècle et adapté en laboratoire par Washburn dans les années 1920 (Rousset-Tournier, 2001). Son application aux milieux rocheux date des années 1940 (Purcell, 1949; Ritter and Drake, 1945). Il permet de déterminer la porosité par intrusion de mercure et d'en étudier la structure.

#### a) Principe de l'essai

Le principe de la porosimétrie par intrusion de mercure consiste à appliquer une série de pressions croissantes puis décroissantes sur un fragment d'échantillon de solide poreux au préalablement séché. L'essai est réalisé en suivant la norme **ISO 15901 (AFNOR, 2016)**.

L'échantillon est placé dans un pénétromètre (Figure 96) qui est fermé par un capuchon. Un vide primaire est établi avant d'y injecter du mercure. Le vide créé est de 0,003 MPa (séchage du matériau et désorption des gaz présents). La cellule du pénétromètre est ensuite remplie de mercure liquide. Le mercure liquide dans les conditions de pression lors des mesures est considéré comme un fluide non mouillant. Un fluide non mouillant est une phase dont l'angle de contact avec un solide sera supérieure à 90°. Dans le cas du mercure, l'angle de contact ( $\Theta$ ) est de 136°. Cette valeurs est celle utilisée dans l'ensemble des méthodes du laboratoire.

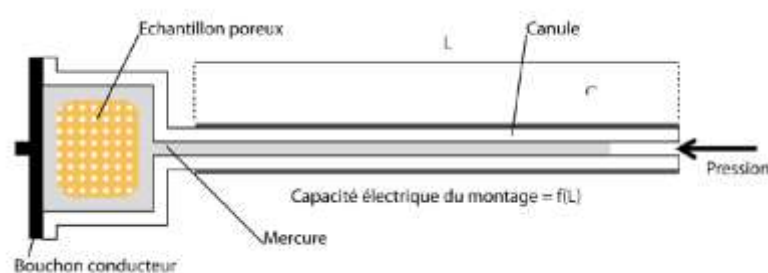


Figure 96 Schéma d'un pénétromètre utilisé en porosimétrie par intrusion de mercure. (Haffen, 2012)

La pression est ensuite augmentée sur le mercure initialement injecté via le capillaire du pénétromètre. On augmente la pression par palier successif jusqu'à 413 MPa, ce qui permet d'explorer la porosité avec un diamètre de pore jusqu'à environ 3,5 nm. L'augmentation de la pression va permettre au mercure de pénétrer le réseau poral selon l'équation de Young-Laplace (éq 2.B.9) (Laplace, 1806; Young, 1855).

$$P = \frac{2\sigma \cos\theta}{R} \quad (\text{éq 2.B.9})$$

Avec  $\sigma$  : la tension superficielle du mercure soit 0.486 N/m à 25°C, R : le rayon de pore ( $\mu\text{m}$ ), P : la pression d'injection (bar),  $\Theta$  : angle de contact entre le mercure sous forme liquide et sous forme

La porosimétrie par intrusion de mercure considère le principe d'un tube parfait. La pression capillaire ( $P_{\text{cap}}$ ) est donc théoriquement imposée sur le mercure liquide ( $P_{\text{Hg}}$ ) moins la pression de la vapeur ( $P_{\text{vap}}$ ). Toutefois les pressions imposées sont nettement supérieures à celle exercée par la forme gazeuse ( $P_{\text{vap}} = 2,6 \text{ Pa}$  à 25°C)(Saillio, 2012). De la sorte, il est généralement considéré que (2.B.10) :

$$P_{\text{cap}} = P_{\text{Hg}} \quad (\text{éq 2.B.10})$$

La relation peut être simplifiée entre pression et rayon de pore pour l'intrusion de mercure par l'équation 2.B.11 :

$$P_{\text{Hg}} = \frac{7,5}{R} \quad (\text{éq 2.B.11})$$

Il convient ainsi de préciser que pour un palier de pression donné, le volume de mercure injecté ne correspondra pas directement à l'ensemble du volume constitué par ce diamètre. Comme décrit précédemment, la porosité est une succession de pore et de capillaire soit une succession de rétrécissement et d'évasement. Un palier d'intrusion traduira en réalité le volume de porosité rendu accessible par ce diamètre et non le volume uniquement constitué de cette dimension de pore. (Pellerin, 1978; Mertz, 1991; Junique, 2021) (Figure 97).

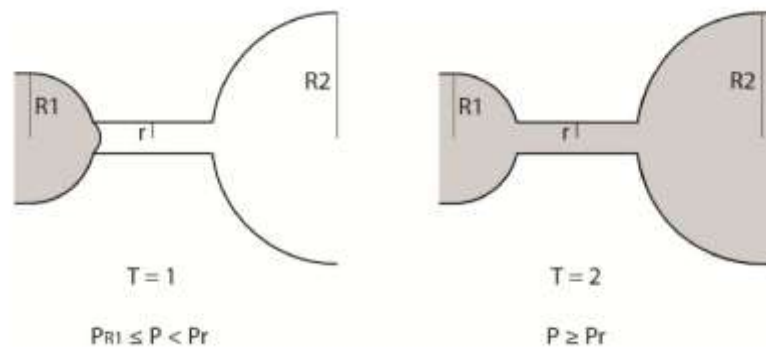


Figure 97 Schéma du rayon d'accès au pore. (Turmel, 2014) d'après (Bousquie, 1979)

#### b) **Réalisation de l'essai**

La réalisation d'un essai de porosimétrie par intrusion de mercure se compose d'une phase ascendante (intrusion de mercure) puis d'une phase de décharge (extrusion du mercure).

L'essai est réalisé sur un porosimètre de marque Micromeretics 9500, la gamme de pression allant de 0,003 à 413 MPa, soit de 400 à 0,003  $\mu\text{m}$  de diamètre. L'essai se divise en une phase de basse pression de 0,001 à 0,15 MPa (soit les pores supérieurs à 15  $\mu\text{m}$  de diamètre) et une phase de haute pression de 0,15 à 413 MPa (inférieure à 15  $\mu\text{m}$  de diamètre). La durée de stabilisation de chaque palier avant l'acquisition d'un point de mesure est de 30 secondes.

Afin de s'assurer de l'absence d'eau dans les échantillons, une lyophilisation est préalablement réalisée sur les échantillons. Cela consiste à immerger pendant plusieurs minutes les échantillons dans de l'azote liquide afin de geler toute l'eau contenu à l'intérieur des échantillons. Ils sont ensuite laissés pendant 48 heures dans un lyophilisateur. L'appareil va générer les conditions nécessaires à la sublimation de l'eau gelée (-52 °C et 0,07 bar). Ce séchage permet de favoriser l'intrusion du mercure et de garantir que l'essai se réalise avec seulement le mercure.

Le gypse étant un matériau naturellement dihydraté ( $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ), nous avons procédé à des mesures DRX sur échantillons bruts et lyophilisés pour s'assurer que l'échantillon reste sous forme de gypse et non anhydre ou semi-hydraté. Pour éviter la réhydratation en cours de mesure, les essais ont été réalisés avec un film en kapton de  $7,5 \mu\text{m}$ . Des essais sur du gypse non lyophilisé avec le filtre ont aussi été réalisés pour s'assurer qu'il n'impactait pas les résultats. (Masson, 2021).

Lors de la phase d'extrusion lors de la diminution de la pression exercée sur le mercure via le capillaire du pénétromètre, la totalité du mercure ne sera pas évacué, la décharge étant plus rapide que la vitesse de retrait du mercure (Figure 98a).

Ce phénomène de piégeage du mercure dans les pores (Wardlaw and Mckellar, 1981) peut être dû à :

- L'état de surface (rugosité des pores)
- Le nombre de capillaire pour un même pore
- La non homogénéité de la porosité
- une juxtaposition d'évasement et d'étranglement.

À partir de la méthode des doubles tangents, il est déterminé un rayon moyen ( $R_m$ ) correspondant au point d'inflexion de la courbe cumulée d'injection. Il représente le plus grand diamètre de pore donnant accès au plus grand volume de porosité. (Beck, 2006; Turmel, 2014). Ce rayon est également identifiable lors de la représentation des volumes injectés pour chaque palier de pression (Figure 98b). Si le réseau poreux est unimodal, il peut être déterminé un rayon d'accès ( $R_a$ ) ou seuil d'accès. Ce rayon correspond à la taille de pore maximale donnant accès à la plus grande partie du volume poreux par intrusion de mercure (Dullien and Dhawan, 1974; Beck, 2006; Turmel, 2014).

La courbe de volume cumulé permet également de définir la structure du réseau poreux. Une courbe uniforme avec un seul point d'inflexion sera dite unimodale. Dans le cas de deux inflexions, le réseau sera bimodal et définit comme hétérogène en cas d'inflexion multiple.

- unimodale : réseau avec une famille de pore donnant accès à l'essentiel de la porosité,
- bimodal : réseau où l'accès sera contrôlé par deux familles de pore,
- hétérogène : réseau à nombreuses familles de pores ou sans structuration.

Ces inflexions peuvent être observées graphiquement par la méthode des doubles tangents. Le calcul du coefficient de dispersion ( $Cd$ ) permet d'apprécier numériquement l'étalement des tailles de pores (Wardlaw et al., 1988; Tomachot, 2002; Vázquez et al., 2013; Turmel, 2014). Il s'effectue à partir des pressions correspondantes à 20, 50 et 80% du volume total de mercure injecté (éq 2.B.12).

$$Cd = \frac{P_{80} - P_{20}}{P_{50}} \quad (\text{éq 2.B.12})$$

- $P_{80}$  : pression à laquelle 80% de la porosité ( $P_{hg}$ ) sera occupée par le mercure (MPa)
- $P_{50}$  : pression à laquelle 50% de la porosité ( $P_{hg}$ ) sera occupée par le mercure (MPa)
- $P_{20}$  : pression à laquelle 20% de la porosité ( $P_{hg}$ ) sera occupée par le mercure (MPa)

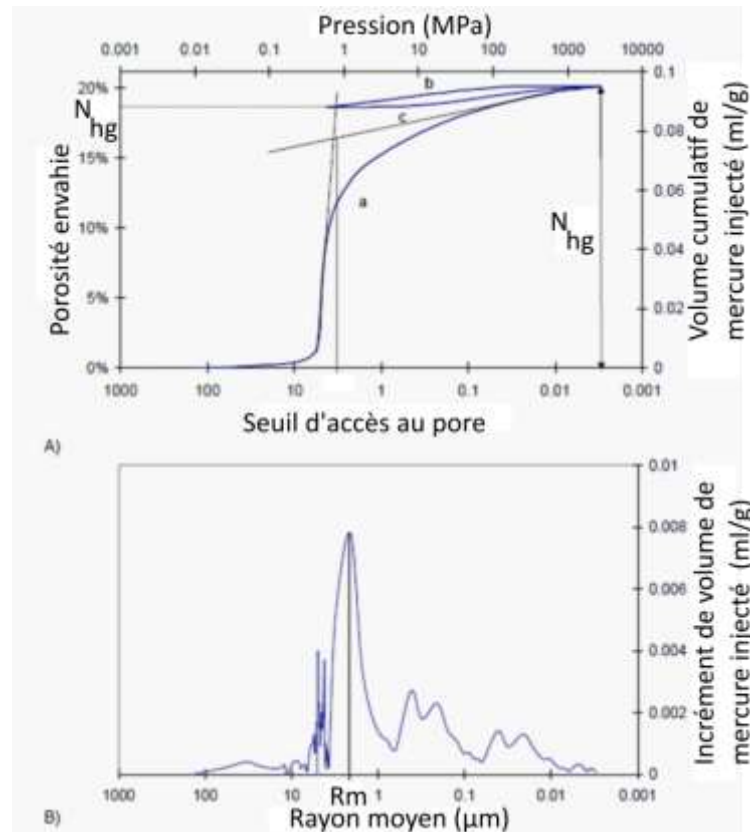


Figure 98 Exemple de courbe d'essai de porosimétrie au mercure. A : Distribution des diamètres de pore. B : courbe d'intrusion cumulée de mercure. (Tomachot, 2002)

Si le coefficient de dispersion est inférieur à 1, alors le réseau est unimodal. S'il est supérieur, alors le réseau sera :

- soit unimodale mais étalé
- soit bimodal
- soit hétérogène

Un second cycle d'intrusion extrusion permet de quantifier la porosité piégée ( $N_p$ ) via la différence de volume entre l'intrusion et l'extrusion. Ce calcul n'a pas été effectué dans ce travail de doctorat.

### c) Écart entre porosité à l'eau et porosité mercure

La porosimétrie au mercure a une limite de détection de l'ordre de quelques nanomètres. La porosité étudiée par intrusion de mercure ne correspond donc pas à l'ensemble du volume de vide réel du matériau. La porosité totale quantifiée sous vide et à l'eau occupant quant à elle l'ensemble du réseau poral, sa valeur devrait être supérieure.

Hors dans sa thèse sur les grès du Buntsandstein alsacien, Mertz, 1991 a obtenu des porosimétries à l'eau inférieures à celle déterminée par porosimétrie d'intrusion de mercure. Ce phénomène a également été observé pour une partie de nos gypses et notamment les gypses saccharoïdes. Les explications de cette anomalie proviennent, d'après (Tomachot, 2002).

- De la prise en compte des pores à la surface de l'échantillon jusque 100 à 200  $\mu\text{m}$ ,
- De la représentativité des échantillons (quelques  $\text{cm}^3$  en porosimétrie mercure),
- La déformation de la roche soumise à des pressions importantes, l'équilibre entre mercure gazeux et liquide n'étant pas instantané (Hammecker, 1993).

### III. Caractérisation du transfert de fluide dans une matrice poreuse

#### 1) Cinétique d'imbibition capillaires

Le coefficient d'imbibition capillaire est obtenu via la norme NF 1925. L'essai consiste à suivre la prise de masse par unité de surface et de la racine carrée du temps ( $\text{g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{t}^{-1/2}$ ) d'un échantillon dans une lame d'eau (environ 3mm) (Figure 99). La cinétique d'imbibition permet de manière indirecte d'avoir des informations sur la porosité, ses dimensions et sa connectivité à travers un coefficient C1. Les éprouvettes sont préalablement séchées et l'essai effectué dans une enceinte fermée pour limiter les effets de l'évaporation qui pourraient se cumuler à l'imbibition. La masse des échantillons est suivie à différents pas de temps jusqu'à saturation complète des éprouvettes (

Figure 100). La saturation est obtenue lorsque la masse est jugée constante (moins de 5% d'écart entre 2 points de mesures). Les pas de mesures sont déterminés en fonction des propriétés attendues des éprouvettes testées.

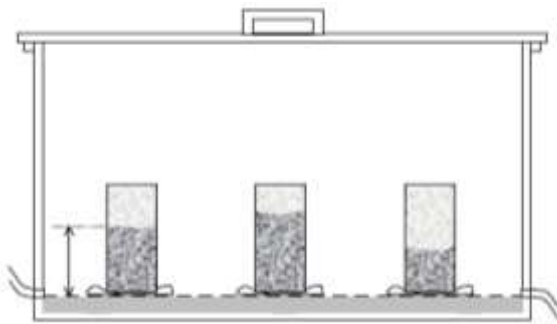


Figure 99 : montage des essais d'imbibition. Tomachot, 2002

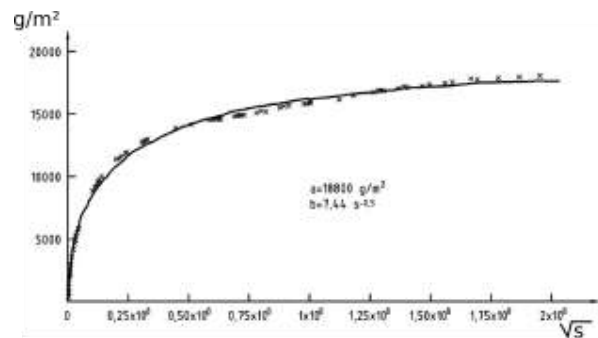


Figure 100 : exemple de courbe de suivi d'imbibition. AFNOR, (1999)

#### a) Les transferts capillaires

Dans le cas de la saturation d'un matériau par un fluide en condition ambiante, il se trouve au contact de 2 fluides non miscibles. Dans le cas des échantillons de gypse, l'eau remplace l'air lors de l'imbibition par remontée capillaire. À la limite de ces 2 phases, une tension superficielle (ou tension interfaciale) apparaît. Les molécules éloignées de l'interface eau/air subissent des interactions isotropes et homogènes dans leurs milieux alors que celles à proximité de l'interface eau/air subissent une plus forte attraction (Figure 101). Cette plus forte attraction est liée à la plus faible quantité d'éléments à proximité de l'interface.

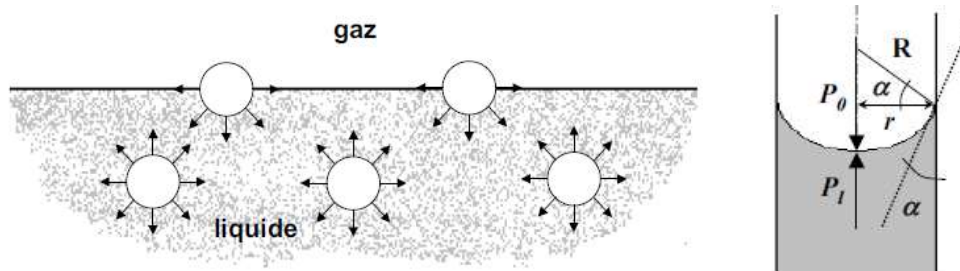


Figure 101 Représentation schématique de la tension interfaciale à l'interface liquide-gaz. (Rousset-Tournier, 2001)

La tension de surface entre l'air et l'eau à 20°C est de  $72,7 \cdot 10^{-3} \text{ N}\cdot\text{m}^{-1}$ . Il s'agit d'un paramètre sensible à la température : il diminue avec l'augmentation de température et la composition du fluide (Tomachot, 2002) a également un impact. L'interaction entre le fluide mouillant (l'eau) et le solide vient s'ajouter. Les propriétés de ces 3 phases vont définir la mouillabilité du matériau à l'eau. Un matériau est dit mouillant si l'angle de contact d'une goutte d'eau déposée à sa surface est supérieur à 90° (tension superficielle de  $5 \cdot 10^{-5}$  à  $5 \cdot 10^{-7} \text{ J}\cdot\text{cm}^{-2}$ ).

Autrement dit la goutte s'étale sur la surface. Si l'angle est inférieur à 90°, le matériau sera imperméable (tension superficielle  $< 1.10^{-5} \text{ J.cm}^{-2}$ ).

D'après la loi de Laplace(1806), la pression capillaire ( $P_c$ ) dans un tube sera directement dépendante de sa géométrie, avec  $r_1$  et  $r_2$  les rayons décrivant le ménisque (éq 2.B.13).

$$P_c = \sigma \left( \frac{1}{r_1} + \frac{1}{r_2} \right) \quad (\text{éq 2.B.13})$$

Dans le cas d'un capillaire cylindrique,  $r_1=r_2=r$ . Les ménisques étant concaves,  $R$  (le rayon de pore) est supérieur à  $r$  (le rayon du ménisque) et le mouillage étant parfait ( $\Theta=0^\circ$ ) alors l'équation de Laplace se simplifie en l'équation 2.B.14

$$P_c = \sigma \frac{2}{R} = \frac{2\sigma}{r} \cos \theta \quad (\text{éq 2.B.14})$$

La concavité du ménisque implique également que la pression de l'air ( $P_{\text{air}}$ ) est supérieure à la pression dans le fluide ( $P_{\text{fluide}}$ ). Tel que  $P_c = P_{\text{air}} - P_{\text{fluide}}$  avec (éq 2.B.15) :

$$P_{\text{fluide}} = \rho g h_c \quad (\text{éq 2.B.15})$$

Où  $\rho$  : masse volumique de l'eau ( $1000 \text{ kg.m}^{-3}$ ),  $g$  : accélération de la pesanteur ( $9.81 \text{ m.s}^{-2}$ ) et  $h_c$  : la hauteur d'ascension capillaire pour établir l'équilibre.

Ce qui conduit avec l'équation de Laplace à l'obtention de la loi de Jurin permettant de calculer la hauteur d'ascension de l'eau ( $h_c$ ) à partir du rayon de tube (éq 2.B.17).

$$h_c = \frac{2\sigma \cos \theta}{R\rho g} \quad (\text{éq 2.B.17})$$

#### b) Equation de Washburn (1921)

Cette équation permet de déterminer l'écoulement d'un fluide newtonien dans un tube cylindrique. Elle dérive de la loi de Hagen-Poiseuille en intégrant l'effet de la pesanteur dans le gradient de charge (éq 2.B.18).

$$Q = \frac{\pi R^4 \left( \frac{2\sigma_{lv} \cos \theta}{R} - \rho g L \right)}{8\eta L} \quad (\text{éq 2.B.18})$$

Le débit dans un cylindre s'exprime également comme la distance parcouru par le fluide en fonction de la section de tube (éq 2.B.19).

$$Q = \frac{dV}{dt} = \pi R^2 \frac{dL}{dt} \quad (\text{éq 2.B.19})$$

Les travaux de Mertz (1991) ont mis en évidence que pour des hauteurs d'éprouvettes de laboratoire (environ 10cm), la gravité n'a pas d'effet significatif sur la hauteur d'ascension du fluide. Ce qui avec l'expression géométrique du débit dans un tube donne l'équation simplifiée (éq 2.B.20).

$$L dL = \frac{R\sigma_{lv} \cos \theta}{4\eta L} \quad (\text{éq 2.B.20})$$

L'intégration de cette équation détermine la relation entre la hauteur du ménisque ( $L$ ) et la racine carrée du temps (2.B.21).

$$L = R^{1/2} \sqrt{\frac{\sigma_{lv} \cos \theta}{2\eta}} t^{1/2} \quad (\text{éq 2.B.21})$$

Ainsi à chaque instant, le volume d'eau (V) pénétrant dans le tube vaut (éq 2.B.22)

$$V = \pi R^2 R^{1/2} \sqrt{\frac{\sigma_{lv} \cos \theta}{2\eta}} = A \cdot t^{1/2} \quad (\text{éq 2.B.22})$$

Soit :

$$A = \pi R^{5/2} \sqrt{\frac{\sigma_{lv} \cos \theta}{2\eta}} \quad (\text{éq 2.B.23})$$

A est le coefficient représentatif de la prise de poids en eau par unité de temps.

c) **Relation entre imbibition capillaire et structure des pores**

L'essai d'imbibition capillaire permet de déterminer un coefficient d'ascension capillaire C1 qui correspond à la pente de la prise de masse exprimée en fonction de la surface et de la racine carrée du temps. L'essai permet également d'obtenir des informations indirectes sur la typologie des réseaux de pores en fonction de l'allure des courbes comme représentées sur la Figure 102. Il est ainsi possible de distinguer 3 catégories de réseaux poreux (Mertz, 1991) :

- Le réseau unimodal avec une seule rupture de pente proche de la valeur de porosité accessible ( $N_{48}$ ),
- Le réseau bimodal : la courbe d'imbibition capillaire est divisée en 2 sections de pente dont la seconde avec une pente plus faible. Une seconde rupture de pente proche de la porosité  $N_{48}$  est également présente. La multiplication des ruptures de pentes indique l'hétérogénéité du réseau poreux.
- Le réseau hétérogène : la courbe reste inférieure à la porosité accessible  $N_{48}$ . Cela peut provenir d'une porosité très faible ou mal connectée.

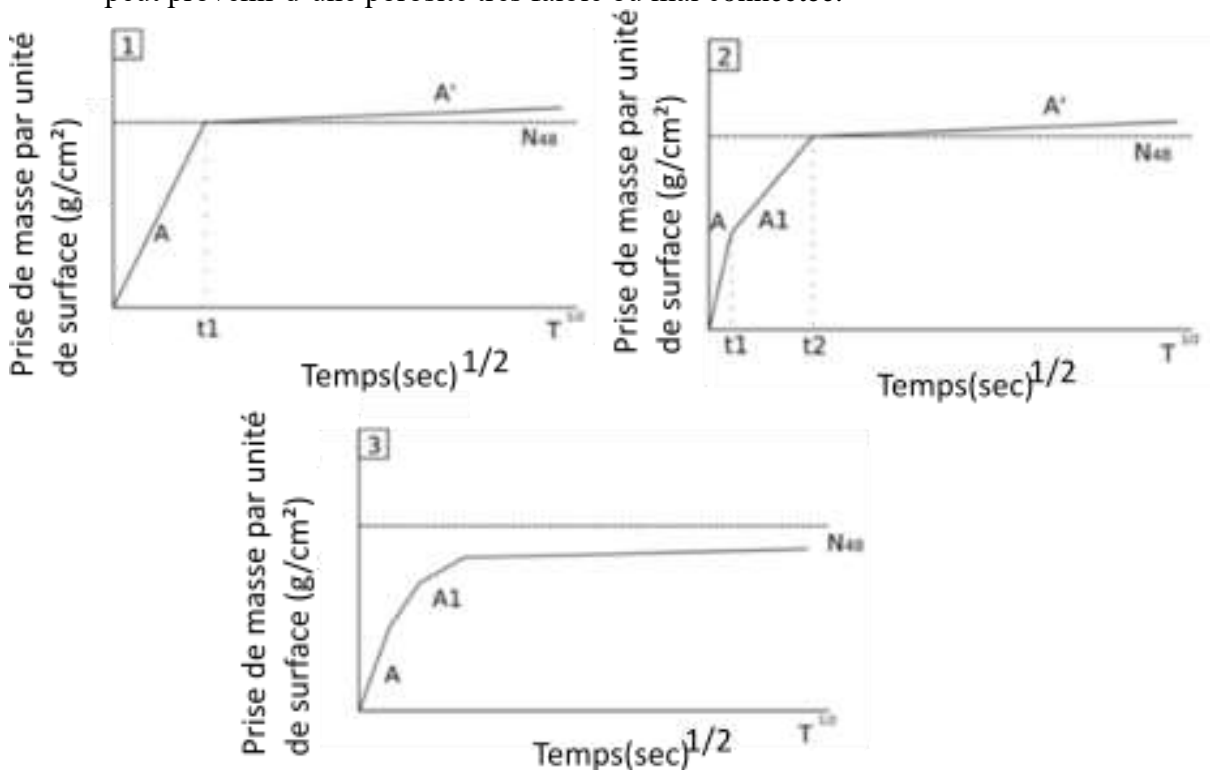


Figure 102 Allure des courbes d'imbibition capillaires selon le type de structure poreuse. 1 : réseau unimodal, 2 : réseau bimodal, 3 : réseau hétérogène. Modifié d'après (Mertz, 1991)

## 2) La perméabilité à l'eau

### a) Cadre général

La perméabilité  $k$  est la capacité d'un fluide à traverser un milieu poreux (Mertz, 1991; Foucault et al., 2014). Cela est valable pour les fluides incompressibles. La perméabilité est dépendante des conditions intrinsèques du milieu poreux et des conditions extérieures (Rousset-Tournier, 2001; Junique, 2021) c'est-à-dire la structure du réseau poreux, le type de fluide, le taux de saturation, connectivité du réseau. La perméabilité ne peut pas être mesurée avec de l'eau pure sur un système avec une dissolution active.

La perméabilité peut être décrite en termes de **perméabilité matricielle et de perméabilité fissurale**. La perméabilité matricielle définit les interactions solide/roche à faible échelle pour des matériaux non fissurés. La perméabilité fissurale, qui selon l'orientation, la géométrie, la connectivité des fissures favorise les écoulements à plus grande échelle (Haffen, 2012) dont les régime d'écoulement sont décrits par d'autres modèles que celui de Darcy (par exemple le modèle de Dienes mentionné par Mertz (1991)). La perméabilité fissurale est essentiellement quantifiable à l'échelle métrique, ce qui ne sera possible dans le cas des travaux dans cette thèse (taille des éprouvettes au maximum 10 cm). L'existence de cette seconde perméabilité est par contre importante pour des conditions de mesure *in situ*.

La perméabilité est déterminée à partir de la loi généralisé de Darcy (éq 2.B.24) (Ha, 2012) :

$$v = \frac{k}{\eta} \cdot \frac{\Delta P}{L} \quad (\text{éq 2.B.24})$$

Avec  $v$ : vitesse (m/s),  $\eta$  : viscosité du fluide (Pa/s) (pour l'eau :  $1,01 \cdot 10^{-3}$  Pa/s à 20°C),  $S$  : section de l'échantillon ( $\text{m}^2$ ),  $\Delta P$  : gradient de pression (Pa),  $L$  : longueur de l'échantillon (m),  $k$  : perméabilité spécifique ou intrinsèque de l'échantillon ( $\text{m}^2$ ).

La vitesse dans le cas d'un tube est également dépendante de la loi de Poiseuille (Poiseuille, 1842) qui indique que si le rayon d'un tube où circule l'eau augmente alors le débit augmente (éq 2.B.25).

$$v = \frac{\pi R^4 \Delta P}{8 \eta L} \quad (\text{éq 2.B.25})$$

$R$  : rayon du tube (m)

L'unité internationale est le  $\text{m}^2$ . Les sciences de la Terre préfère utiliser le Darcy, qui vaut  $1 \text{ mD} = 1 \cdot 10^{-15} \text{ m}^2$ . La partie expérimentale de la thèse utilise le milliDarcy. Toutefois, les logiciels numériques utilisant le système international dans leurs paramétrages, une conversion est effectuée dans la partie numérique de la thèse.

### b) Limitation de la loi de Darcy pour les faibles gradients de pression

Ce cas de figure est principalement considéré pour les essais réalisés avec des perméamètres à gaz. Ainsi, la vitesse de circulation du gaz n'est pas homogène entre le centre et les parois d'un tube. Il s'agit de l'écoulement de Knudsen, 1909 et qui est à l'origine des différences observées entre les essais de perméabilité à l'eau et au gaz. Cela peut être corrigé via l'équation de Klinkenberg, 1941 (éq 2.B.26).

$$k_g = k_l \left( 1 + \frac{\beta}{P_F} \right) \quad (\text{éq 2.B.26})$$

Avec  $k_g$  : perméabilité au gaz (apparente),  $k_l$  : perméabilité à l'eau (réelle),  $\beta$  ; constante de Klinkenberg propre à chaque roche,  $P_F$  : pression moyenne



### c) Limitation de la loi de Darcy pour les forts gradients de pression

Une des principales limitations de la loi de Darcy pour les régimes à fort gradient est la transition d'un écoulement laminaire à turbulent. L'écoulement n'est plus homogène et uniforme, la vitesse des particules du fluides sont alors irrégulière et le déplacement aléatoire au sein de l'échantillon. Ce changement intervient lorsque le nombre de Reynolds ( $Re$ ) est supérieur à 2000 pour un cas parfait. Dans un réseau poreux dont le diamètre est variable, tortueux et de rugosité non uniforme. Le nombre de Reynolds doit être inférieur à 1 pour maintenir l'état laminaire (Yale, 1984; Gueguen and Palciauskas, 1992).

Ce nombre est déterminé par l'équation suivante 2.B.27 :

$$Re = \frac{\rho v \sqrt{k}}{\eta N_t} \quad (\text{éq 2.B.27})$$

Où  $Re$  : nombre de Reynolds,  $\rho$  : masse volumique du fluide (pour l'eau 998,29 à 20°C),  $v$  : vitesse moyenne d'écoulement (m/s),  $K$  : perméabilité ( $m^2$ ),  $N_t$  : porosité totale (%),  $\eta$  : viscosité dynamique du fluide ( $0,001003 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}$  à 20 °C)

### 3) *Protocole de mesure de la perméabilité à l'eau*

Les échantillons de gypse utilisés sont des cylindres de diamètre 5 cm et de hauteur 10 cm (élancement de 2). Les échantillons sont préalablement saturés en eau après un pompage sous vide imposé de manière similaire à la détermination de la porosité totale à l'eau. Le montage expérimental utilise une cellule triaxiale. L'échantillon est inséré dans une membrane en latex avec une pierre poreuse et un filtre à chaque extrémité. Ces pierres ont pour rôle la distribution uniforme des pressions imposées (Figure 103). L'ensemble est placé dans la cellule triaxiale avec les embases d'arrivées et de sortie d'eau. Des joints toriques sont placés à chaque extrémité pour garantir l'étanchéité du montage. La cellule est ensuite fermée et remplie d'eau, qui va servir de fluide de confinement.

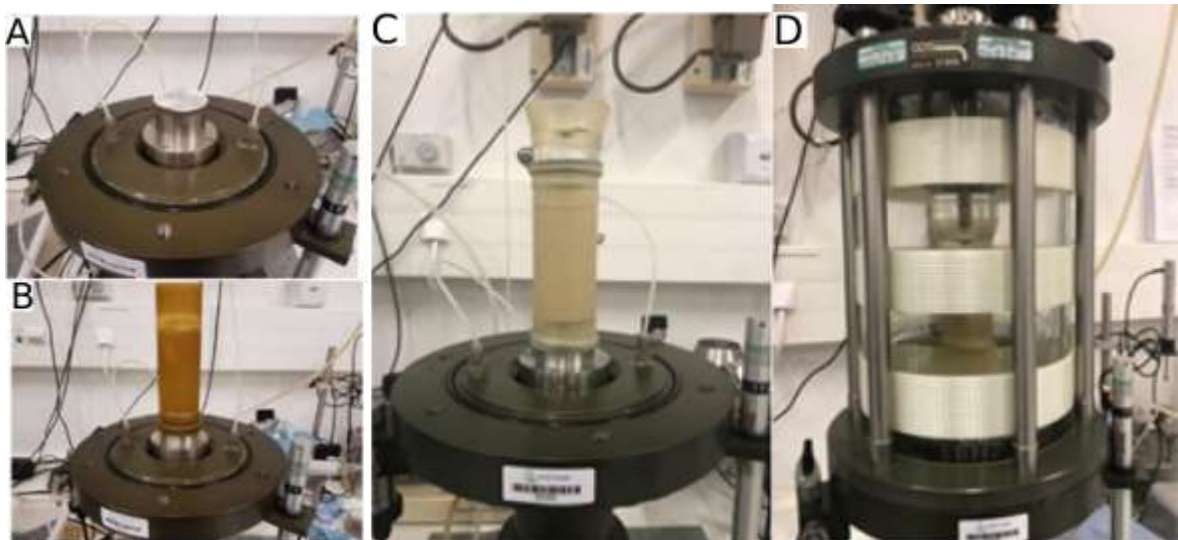


Figure 103 Illustration du montage d'un essai de perméabilité. A : embase de pénétration de l'eau, B : Mise en place de l'éprouvette avec des joints toriques, C : Installation achevée de l'éprouvette et de la tête de sortie d'eau. D : Remplissage de la cellule triaxiale pour l'imposition d'une pression latéral.

Une mise en charge progressive à l'intérieur de l'échantillon est réalisée jusqu'à 400 kPa par des générateurs de pression à chaque extrémité de l'éprouvette (Tableau 18) la mise en charge est réalisée par palier successif avec une même pression appliquée de chaque côté du système. Le changement de palier est effectué une fois l'équilibre atteint pour le palier précédent. Pour

éviter les circulations de fluide hors de l'échantillon un générateur de pression applique également une pression de confinement ( $P_c$ ) par palier à l'extérieur de la membrane. Cette pression de confinement est toujours supérieure à la pression interne ( $P_f < P_c$ ). L'essai est ensuite réalisé en appliquant des pressions différentes à chaque extrémité de l'échantillon, générant ainsi un gradient de pression  $\Delta P$ .

**Tableau 18 Pressions appliquée à chaque étape de l'essai de perméabilité**

	Pression d'entrée kPa	Pression de sortie kPa	Gradient de pression kPa	Pression de confinement (kPa)
Palier 1	150	150	0	300
Palier 2	400	400	0	800
Palier 3	470	420	50	930
Palier 4	520	470	50	1020

Le gradient de pression utilisée est de 50 kPa sur 2 paliers afin de visualiser d'éventuels effets de la pression de confinement (Rousset-Tournier, 2001). Aucune modification entre les perméabilités mesurées aux paliers 3 et 4 n'a été observée sur l'ensemble des essais.

Enfin, afin de limiter les phénomènes de dissolution, une eau saturée en sulfates a été utilisées pour les essais. Les paliers 3 et 4 ont été maintenus plusieurs heures avec une acquisition toute les 10 s pour suivre l'évolution des volumes dans les générateurs.

#### **IV. Paramètre mécanique**

La détermination de la résistance de nos échantillons de gypse au niveau mécanique a été effectuée sur des éprouvettes de diamètre 50 mm et d'éclatement 2. Des méthodes non destructives, via la vitesse de propagation des ondes et la fréquence de résonance sont privilégiées pour permettre le suivi post percolation de nos éprouvettes. Ce suivi est effectué par l'évolution des valeurs brutes (fréquence, vitesse d'onde) mais aussi par la détermination du module élastique. Des essais de compression ont également été effectués en plus faible nombre pour la mise en place d'un essai de fluage.

##### **1) Résistance en compression**

L'essai en compression simple selon la norme NF EN 1926 permet de mesurer la résistance générale du matériau soumis à une contrainte  $\sigma$  définie comme suit (éq 2.B.28).

$$\sigma = \frac{F}{S} \quad (\text{éq 2.B.28})$$

Les principaux attraits de cette méthode restent de pouvoir en déterminer le module de Young statique (ou module d'élasticité) ( $E_{stat}$ ) à partir de la phase d'ascension linéaire dite élastique de la déformation en fonction de la contrainte selon la loi de Hooke Figure 104).

Le coefficient de Poisson et le module de Young ne nécessitent pas d'atteindre la rupture pour pouvoir être calculé contrairement à la résistance mécanique simple  $E_{stat}$  qui est la force maximale supportée par le matériau avant rupture (éq 2.B.29).

$$E_{stat} = \frac{\sigma}{\varepsilon} \quad (\text{éq 2.B.29})$$

Le coefficient de Poisson et le module de Young sont utilisés dans les modèles mécaniques existants (lois de comportement). Ils figurent parmi les paramètres nécessaires à la description et à la compréhension des propriétés mécaniques d'un matériau. La force maximale  $F_{max}$

imposée lors de la rupture permet avec la surface  $S$  de l'éprouvette testée de calculer la résistance en compression ( $R_c = F_{\max}/S$ ) du matériau exprimée en MPa. La force maximale atteinte à la rupture permet également avec la surface de l'éprouvette de déterminer la force de résistance en compression ( $R_c$ ) exprimée en MPa.

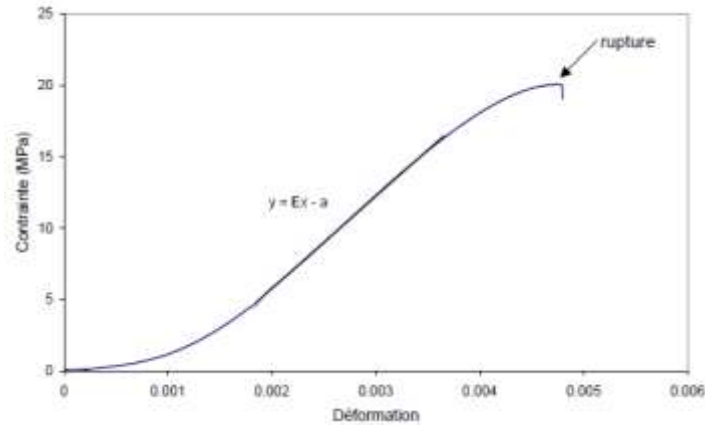


Figure 104 Exemple de courbe contrainte déformation. (Tomachot, 2002)

## 2) Vitesse du son

La vitesse du son est un moyen non destructif via la propagation d'onde de déterminer le niveau de fissuration et d'endommagement d'un matériau. Elle est mesurée en suivant la norme NF EN 14579 (AFNOR, 2005). Dans ce travail de thèse, un appareil de type pundit de la marque Proceq a été utilisé pour mesurer la vitesse de propagation des ondes P (Figure 105). Les transducteurs utilisés ont été réglés pour une fréquence de 54kHz. L'essai consiste à mesurer le temps mis par un train d'onde à parcourir une éprouvette. Ce temps en fonction de la distance à parcourir (la longueur de l'éprouvette) permet d'en déduire la vitesse.

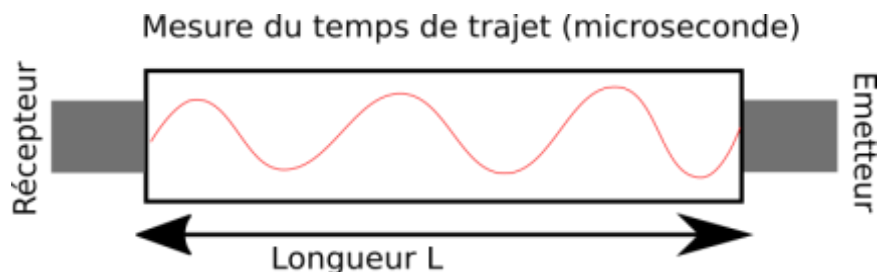


Figure 105 : schéma de principe de la mesure de la vitesse du son.

À partir de cette vitesse et de la densité du matériau (connue via la masse volumique, voir point sur la porosité à l'eau), il est possible de déterminer un module de Young Dynamique suivant la relation (éq 2.B.30) (Vigroux, 2020):

$$E_{dyn} = \frac{V_s^2 * MV (1+\nu)(1-2\nu)}{(1-\nu)} \quad \text{éq 2.B.30}$$

Le module d'élasticité dynamique ( $E_{dyn}$ ) est généralement supérieur au module d'élasticité statique obtenu par les essais de compression. Cela est dû à la perturbation de courte durée et purement élastique générée par l'essai dynamique (Clark, 1965; Christaras et al., 1994) tandis que l'essai d'écrasement ne permet pas le déplacement libre de l'éprouvette.

Une attention particulière doit être portée à l'état de saturation des éprouvettes lors de la mesure. L'essai est en effet sensible à l'humidité du matériau testé, humidité qui augmente la vitesse de propagation des ondes. Les essais ont été réalisés à sec ou à saturation complète des éprouvettes dans ce travail de thèse.

Dans le cas d'un cristal pur de gypse, la vitesse du son est de 5200 +/-300 m/s selon les résultats d'Auvray (2003). Cette vitesse théorique parfaite n'est que rarement rencontrée dans la nature du fait des imperfections de cristallisations, des orientations de minéraux, des variations minéralogiques et de la porosité des matériaux. Cette vitesse théorique ( $V_t$ ) est utilisée pour déterminer l'indice de continuité ( $I_c$ ) des éprouvettes de gypse testées selon la relation (éq 2.B.31). D'après les travaux de Tourenq et al. (1971), cet indice peut être corrélé à la porosité totale à l'eau pour en déduire la part de porosité issue de la fissuration ( $N_f$ ) et celle issue des pores ( $N_p$ ) du matériau (Figure 95).

$$I_c = \frac{V_p}{V_t} * 100 \quad (\text{éq 2.B.31})$$

Cette détermination est réalisée graphiquement à partir d'un ensemble d'équations décrites dans la partie de ce chapitre traitant de la porosité.

### 3) Fréquence de résonance

La mesure de la fréquence de résonance est un essai non destructif décrit dans la norme NF EN 14146 (AFNOR, 2004). Elle repose sur le principe qu'un matériau oscille avec une amplitude maximale pour une fréquence d'excitation donnée. C'est cette fréquence propre à chaque matériau qui est appelée fréquence de résonance. La technique consiste à exciter mécaniquement le matériau afin de générer une onde. On analyse ensuite la vibration et son atténuation. Le signal acquis est ensuite interprété numériquement à l'aide d'une transformation de Fourier pour établir le spectre de fréquence. La fréquence dominante de cette onde (en KHz) est la fréquence de résonance propre à chaque matériau (Figure 106). La méthode de fréquence de résonance est également sensible à la structure du squelette et à son évolution. Cette mesure est similaire en termes d'informations obtenues à la vitesse de propagation des ondes sonores. La fréquence de résonance reste toutefois moins utilisée que la vitesse du son. Son avantage réside dans le fait qu'elle est plus sensible à la dégradation des matériaux (Saad, 2011).

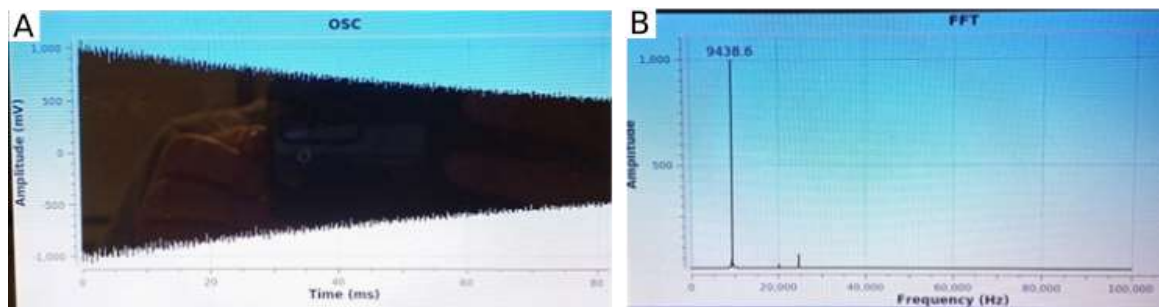


Figure 106 A : exemple de signal obtenu par excitation. B : spectre de fréquence obtenu après traitement

Pour réaliser une mesure, l'éprouvette est placée sur des supports triangulaires pour que la fréquence mesurée ne soit pas influencée par la table d'essai. Afin que ces supports n'interagissent pas non plus avec l'éprouvette, ils sont placés à une distance de 22,4% du bord de l'éprouvette par rapport à la longueur totale (Figure 107). Cette distance correspond à un nœud de résonance. Sur un nœud de résonance, l'onde est compensée et s'annule, les interférences sont inexistantes.

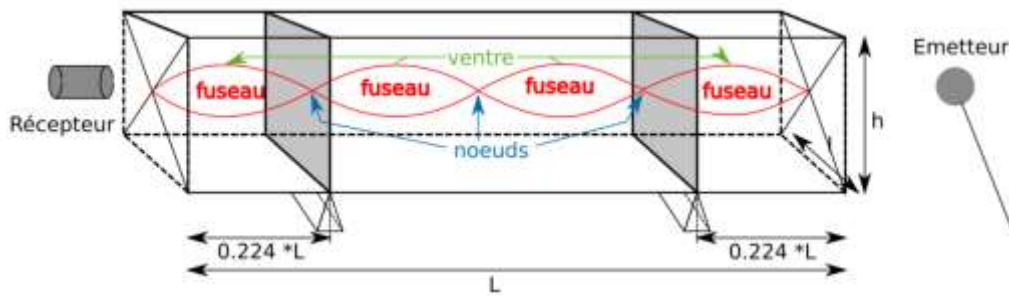


Figure 107 Principe de l'essai de fréquence de résonance en mode longitudinal

Dans le cadre de cette thèse, un appareil de type Grindosnic MK7 a été utilisé pour l'acquisition et le traitement des mesures. L'appareil peut enregistrer une gamme de fréquence de 0 à 100kHz. L'appareil a été paramétré pour acquérir 1000 points de mesure. L'appareil peut fonctionner pour des ondes de flexion, longitudinales et en torsion. L'appareil, une fois la fréquence de résonance acquise et les paramètres (géométrie et masse) de l'éprouvette introduits, peut calculer automatiquement un module d'élasticité ( $E_{mod}$ ), un module de cisaillement ( $G$ ) et le coefficient de Poisson ( $\nu$ ) selon le mode sélectionné selon les formules suivantes (éq 2.B.32, 33,34). La détermination des paramètres nécessitent des géométries et des élancements à respecter (Tableau 19). L'utilisation d'éprouvettes cylindriques induites ainsi que le module d'élasticité est principalement mis en avant dans la suite de ce manuscrit.

$$E_{mod} = 4.10^{-6} L^2 F^2 \rho \quad (\text{éq 2.B.32})$$

$$\nu = \frac{E_{mod}}{G} - 1 \quad \text{éq 2.B.33}$$

$$G = 16 \left( \frac{L}{\pi d^2} \right) m f_t^2 \quad (\text{éq 2.B.34})$$

Avec  $L$  : longueur de l'échantillon (mm),  $F$  : fréquence de résonance (Hz),  $d$  : diamètre de l'échantillon (mm),  $f_t$  : fréquence de torsion (Hz),  $m$  : masse de l'échantillon (kg),  $\rho$  : masse volumique de l'échantillon ( $\text{kg.m}^{-3}$ ).

Tableau 19 Synthèse des géométries pour les mesures en fréquence de résonance

Shape	Mode	Measurable properties	Minimum Dimensions	Recommended ratios	Flex	Long	Tors	F/T
Bar		Young's Modulus	$L \geq 30 \text{ mm}$	Ratio width/Thickn 1/5 Ratio Height/width 1/3	X	X		
		Shear modulus		Ratio Length/High 1/5 Ratio Height/width 1/3			X	
		Young's + Shear + Poisson	$L \geq 40 \text{ mm}$	Ratio Length/Height 1/5 Ratio Height-width 1/3				X
Cylinder		Young's Modulus	$L \geq 30 \text{ mm}$	Ratio Diam/Length 1/5	X	X		
Disc		Young's + Shear + Poisson	Diam. $\geq 30 \text{ mm}$	Ratio Diameter/High 1/4				X
GW Thin		Young's Modulus	Diam. $\geq 30 \text{ mm}$	High < Diameter			X*	
GW Thick		Young's Modulus	Diam. $\geq 30 \text{ mm}$	Length > diameter			X*	
Tube		Young's modulus	$L \geq 30 \text{ mm}$		X	X		

D'après la formule utilisée dans sa thèse par Saad (2011), l'incertitude de la fréquence de résonance mesurée pour nos échantillons est de 50 Hz.

#### 4) Comparaison entre vitesse du son et fréquence de résonance

Les méthodes de propagation des ondes sonores et de fréquence de résonance étant proches dans les phénomènes qu'elles décrivent, ces 2 méthodes avec des éprouvettes de différentes roches présentent dans la lithothèque du laboratoire (Figure 108). L'alignement presque parfait permet de conclure que les 2 méthodes sont comparables pour la détermination des états initiaux.

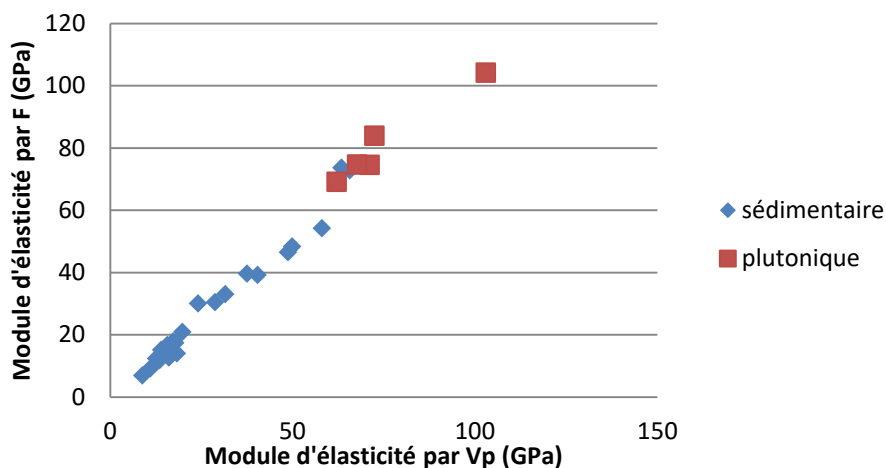


Figure 108 Comparaison des modules d'élasticité obtenus par vitesse du son (Vp) et fréquence de résonance (F)

### C. Montages et protocoles expérimentaux

#### I. Étude des cinétiques de dissolution de poudre de gypse

Afin de quantifier les cinétiques de dissolution, nous avons utilisé une sonde conductimétrique metrohm à 5 pole. Le capteur possède une gamme de mesure de 1 à 10 000  $\mu\text{S}/\text{cm}$ . La conductivité étant un paramètre sensible à la température, la sonde est couplée à une sonde de température Pt 100 permettant une correction automatique des valeurs à la température souhaitée (réglage dans le logiciel). La précision du capteur est de 1  $\mu\text{S}/\text{cm}$  pour les valeurs inférieures à 1000  $\mu\text{S}/\text{cm}$  et de l'ordre de 10  $\mu\text{S}/\text{cm}$  pour les conductivités supérieures à 1 mS/cm.

La conductivité ne permet pas de discriminer les éléments mis en solution par la dissolution. Compte tenu de la forte teneur en gypse de nos faciès et de la cinétique de dissolution plus rapide du gypse par rapport aux autres minéraux identifiés (quartz, calcite...), il est considéré que l'augmentation de conductivité est uniquement liée au gypse. La caractérisation minéralogique est présentée au chapitre 3.

##### 1) Principe de l'essai

Afin de déterminer les cinétiques de dissolution des faciès de gypse, des essais de dissolution sur poudre (ou essai batch) ont été réalisés avec un suivi conductimétrique. L'essai est réalisé dans un réacteur conique de 80 ml (Figure 109) chemisé par un moule en téflon. Ce moule s'insère dans un bécher thermostaté grâce à une double paroi permettant d'imposer et de maintenir une température constante dans le système par circulation de fluide depuis un cryostat. La température choisie doit être supérieure à la température ambiante de la pièce (23°C) soit 25°C, 30 et 35°C. Le montage est ensuite fermé pour réduire les effets de l'évaporation au cours de l'essai qui dure quelques heures. La sonde conductimétrique et une pale d'agitation en téflon sont immergés dans les 50 ml de suspension de gypse testés via des trous de réserve dans le couvercle du réacteur. Une troisième ouverture permet d'introduire

manuellement une masse de 0,5 g de gypse dans les 80 ml d'eau ultra pure 15 Mohms dans le réacteur à t = 0 de l'essai (elle est obstruée une fois l'échantillon introduit).

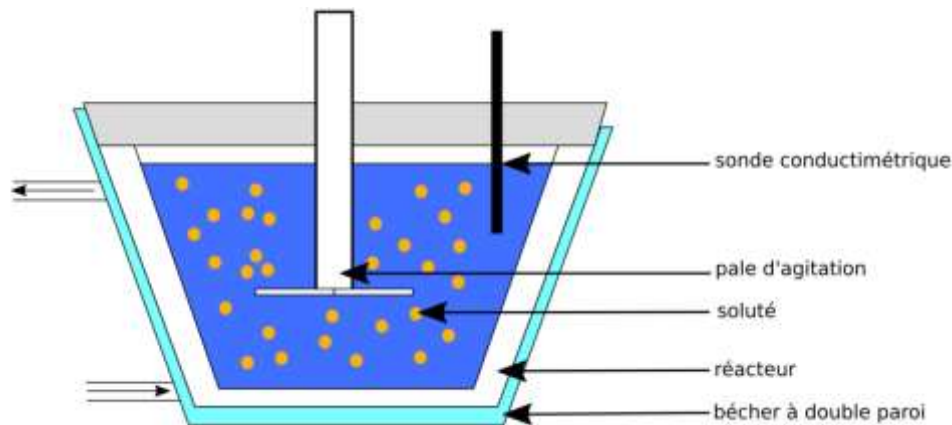


Figure 109 Schéma du montage expérimental de dissolution sur poudre

Selon la bibliographie, la dissolution du gypse est sensible à la température, à la vitesse d'agitation et à la granulométrie de la poudre testée (voir chapitre 1).

Les essais de dissolution sont réalisés pour différentes conditions expérimentales et chaque faciès de gypse (à l'exception du faciès orogénique) (Tableau 20). Nous avons ainsi utilisé 2 classes granulométriques : la première est  $< 200 \mu\text{m}$  et la seconde est comprise entre 200 et  $500 \mu\text{m}$ . Trois températures (25, 30 et  $35^\circ\text{C}$ ) et 3 vitesses d'agitation (150, 300 et 450 tours par min) ont également été testés ce qui donne le programme expérimental du Tableau 20. Chaque jeu de paramètre a été répété 3 fois pour en évaluer la répétabilité. Chaque essai a duré 24 h avec une acquisition de la conductivité toutes les 10 s pendant 4 h, puis toutes les 15 min jusqu'à fin de l'essai. Cela du fait de la limitation du nombre de point enregistrable par le système d'acquisition. L'espacement plus court sur la première cinétique est lié à sa durée plus courte et au besoin d'un grand nombre de point pour obtenir une pente représentative. Afin de saturer le volume d'eau, des masses de gypse broyé comprises entre 0,35 et 0,8 g ont été testées, La masse devant être ajoutés augmentant avec la température.

Tableau 20 Programme expérimental de dissolution sur poudre.

Granulométrie ( $\mu\text{m}$ )	[0,200 ; 0,500]						< 0,200	
Vitesse de rotation (tpm)	300	450	150	300	450	450	300	450
Température ( $^\circ\text{C}$ )	25		30			35	30	
Gypse matriciel	3	3	3	3	3	3	3	3
Gypse saccharoïde pur	3	3	3	3	3	3	3	3
Gypse saccharoïde impur	3	3	3	3	3	3	3	3
Fer de lance	3	3	3	3	3	3	3	3
Gypse albastroïde	3	3	3	3	3	3	3	3

La cinétique de dissolution est impactée par la surface de contact entre le fluide et les grains. Cette surface n'étant pas homogène de par la variation des diamètres de grains et de leurs rugosités, la détermination d'une surface à partir d'un diamètre moyen et pour des géométries parfaites apparait comme approximative. Des essais BET ont été réalisés pour apprécier plus finement la surface spécifique.

## 2) Traitement des résultats

La conductivité mesurée en fonction du temps est convertie en une concentration pour chaque point mesurée suivant les équations décrites précédemment. La détermination des paramètres de dissolution (ordre chimique de réaction et taux de dissolution) sont déterminés graphiquement à partir d'une courbe log-log (Figure 110) en fonction des dérivés des concentrations en fonctions du temps suivant l'équation suivante (éq 2.B.35) (Zaier, 2021) :

$$\log\left(\frac{C_{sat}}{dt}\right) = \log\frac{A}{V} \frac{k_s}{C_{sat}} + n \log(1 - C_{sat}) \quad (\text{éq 2.B.35})$$

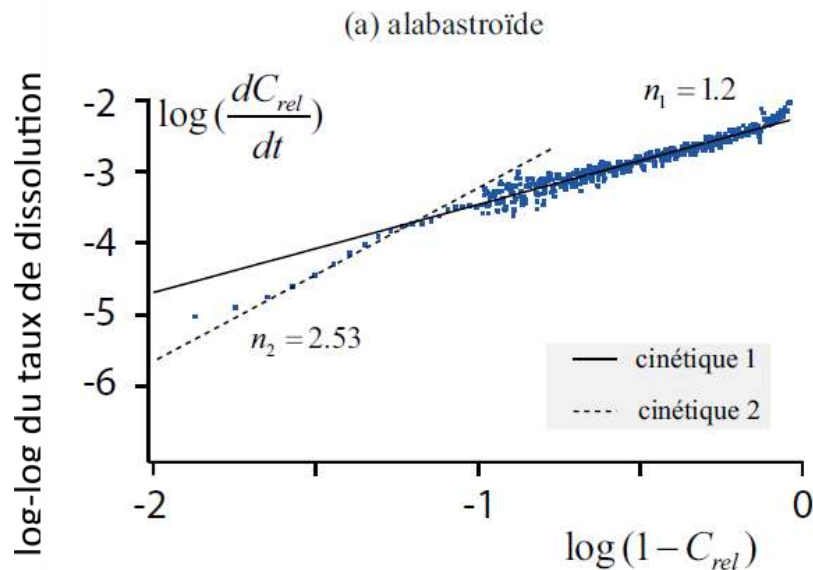


Figure 110 Représentation des résultats en log-log pour la détermination de l'ordre chimique de réaction. (Zaier, 2021)

## 3) Surface spécifique

La dissolution sur poudre implique l'utilisation de grains appartenant à une classe granulométrique connue mais dont la surface réelle ne peut qu'être approximée par la méthode mathématique. Il est ainsi obtenu une valeur théorique approximative ne tenant pas compte de la rugosité des grains. Pour un milieu poreux, la surface spécifique se définit comme la surface développée cumulée du squelette particulaire (Beck, 2006). La surface sera exprimée en m<sup>2</sup>/g. Pour déterminer la surface spécifique de nos poudres d'essais la plus précise possible, nous avons eu recours à l'essai BET, des initiales de ces créateurs Brunauer, Emmet, Taller (Brunauer et al., 1938). L'essai est basé sur le principe de l'adsorption physique de molécule de gaz et nécessite que plusieurs hypothèses soient vérifiées pour être valable (Tomachot, 2002) :

- Il faut des surfaces homogènes, une couche de molécule adsorbée peut s'initier sur une première couche adsorbée sans que cette dernière ne soit complète,
- Que 100 % des sites d'adsorption physique de la molécule de gaz sur la surface du solide sont accessibles. Les sites sont énergétiquement équivalents sur l'ensemble de la surface du solide, et à partir de la seconde couche d'adsorption de molécule,
- L'énergie d'adsorption est égale à celle de la liquéfaction du gaz.



L'expérience consiste à quantifier le volume d'une monocouche adsorbé sur l'échantillon pour en déterminer la surface spécifique suivant la relation (éq 2.B.36) :

$$S_s = \frac{S_0 V_m}{M} \quad (\text{éq 2.B.36})$$

Avec M : masse de l'adsorbant (g),  $S_0$  : surface couverte par 1 cm<sup>3</sup> d'adsorbat (m<sup>2</sup>),  $V_m$  : volume de gaz (m<sup>3</sup>).

Un appareil BET de marque micromeritics ASAP 2010 utilisant du diazote (N<sub>2</sub>) a été utilisé. La température d'ébullition de l'azote est de 77,3 K. À cette température, la surface d'une molécule d'azote est de 16,2.10<sup>-2</sup> nm<sup>2</sup> soit 4.35 m<sup>2</sup>/m<sup>3</sup>, le volume molaire de l'azote étant de 22,414.10<sup>-3</sup> m<sup>3</sup>.mol<sup>-1</sup>. L'utilisation de ce gaz non polaire permet de considérer nulle la chimisorption (Rousset-Tournier, 2001).

Le volume de gaz monomoléculaire est déterminé à partir des constantes  $\beta_{bet}$  et  $\alpha_{bet}$  tel que (éq 2.B.37) :

$$V_m = \frac{1}{\alpha_{BET} + \beta_{BET}} \quad (\text{éq 2.B.37})$$

L'essai se réalise sous vide et par des paliers de pression successifs. Pour chaque palier, le volume de gaz adsorbé est déterminé. L'adsorption peut être induite par 2 phénomènes

- Adsorption physique : elle correspond à la condensation de surface et se déroule pour de faible énergie (quelques kcal/mol). Elle peut être multimoléculaire et est favorisée par des diminutions de température.
- Adsorption chimique qui se déroule pour des énergies supérieure à 10 kcal/mol. Elle se distingue par la création de liaison chimique faible entre les atomes. Cette adsorption est monomoléculaire et est favorisé par la température.

**L'adsorption physique est causée par les liaisons de types VAN DER WALLS. La quantité de gaz adsorbé sur le solide sera fonction de :**

- la température
- la pression partielle de la vapeur
- la nature du gaz
- la nature de la surface

L'augmentation du volume adsorbé en cours d'essai peut être catégorisée en 5 types d'isothermes (Figure 111) selon les conditions de pression et températures.

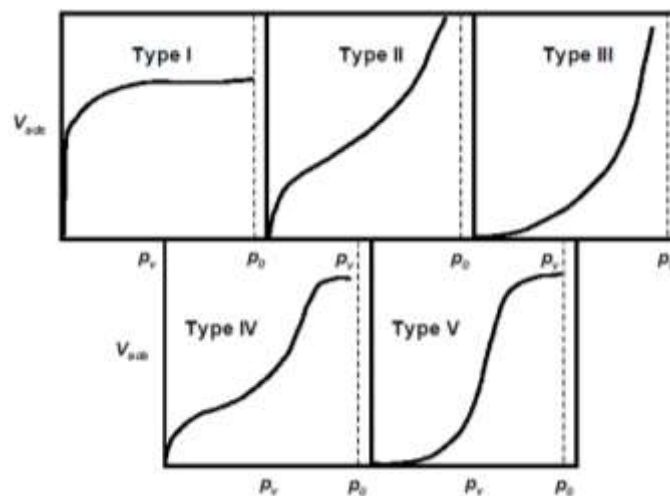


Figure 111 Classification des isothermes d'adsorption (Rousset-Tournier, 2001. D'après Brunauer et al., 1940)

- Le type I correspond à une isotherme de chimie –sorption, soit une adsorption très faible.
- Le type II représente des structures non poreuses comme régulièrement rencontrées dans les roches. Les pores sont souvent de taille accessible et considérer le grain comme une surface homogène.
- Le type III est représentatif des corps où la chaleur d’absorption est inférieure à la chaleur de liquéfaction du gaz. Il y a ainsi proche de la saturation une condensation du gaz.
- Le type IV représente les corps poreux avec une adsorption monocouche puis multicouche sur la paroi des pores avant de s’étendre aux surfaces non poreuses.
- Le type V Il s’agit d’un cas conjuguant les types III et IV avec une condensation avec une adsorption sur la surface poreuse de la poudre.

Les types I, II et IV sont les plus caractéristiques des solides microporeux, non poreux et poreux (Rousset-Tournier, 2001). Il peut être considéré comme non poreux (type II) un solide dont les pores sont suffisamment larges pour qu’il n’y ait pas d’interférence entre les faces des pores. Ce type se décompose en 3 parties avec une phase d’adsorption monomoléculaire puis pluri moléculaire avant d’atteindre un stade de condensation (Figure 112).

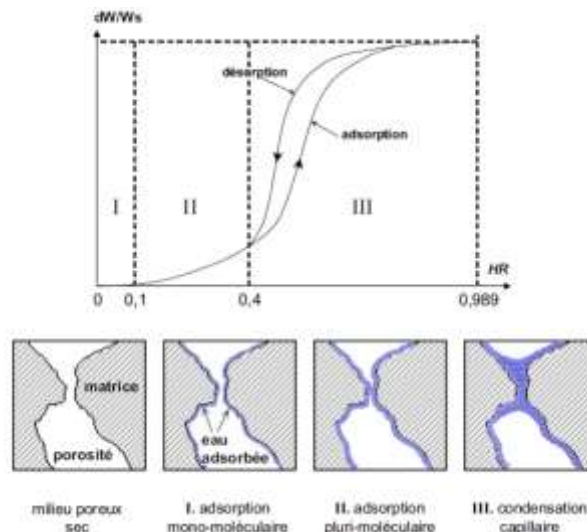


Figure 112 isotherme d'adsorption / désorption et représentant des processus induit. (Rousset-Tournier, 2001)

L’essai reposant sur un principe similaire à celui de la loi de Kelvin, une distribution des diamètres de pores est possible suivant la relation suivante (éq 2.B.38) :

$$\ln \frac{P}{P_0} = \frac{2\sigma V_m \cos\theta}{rRT} \quad (\text{éq 2.B.38})$$

Avec P : pression exercée, P0 : pression de saturation  $\sigma$  : tension de surface de l’adsorbat kcal/mol,  $\theta$  : angle de contact ( $^\circ$ ), r : rayon de pore ( $\mu\text{m}$ ), R : constante des gaz parfait (8.3143), T : température en (K)

En convertissant le volume de gaz à la pression de saturation en un volume de liquide, il est possible de déterminer le rayon r (éq 2.B.39) :

$$r_m = \frac{2V_s \cdot 0,00155}{S_s} \quad (\text{éq 2.B.39})$$

Avec Vp : volume de pore (cc/g), Vs : volume de gaz adsorbé à la P0 (cc), M : masse de l’échantillon (g)

Les poudres sont séchées dans une étuve à 40°C puis soumise à un vide pendant 24 heures à une température de 40°C. L'essai est ensuite lancé sur une rampe de mesure et le gaz d'adsorption introduit sans rompre le vide. Il a été analysé les deux classes granulométriques utilisées pour nos essais de dissolution (< 0,2 mm et compris entre 0,2 et 0,5 mm). Des fragments de roches de taille comprises entre 2 et 5 mm ont également été testés. À titre de comparaison, il est donné dans le Tableau 21 des valeurs de surface spécifique obtenue par BET pour diverses roches et minéraux issus de la littérature.

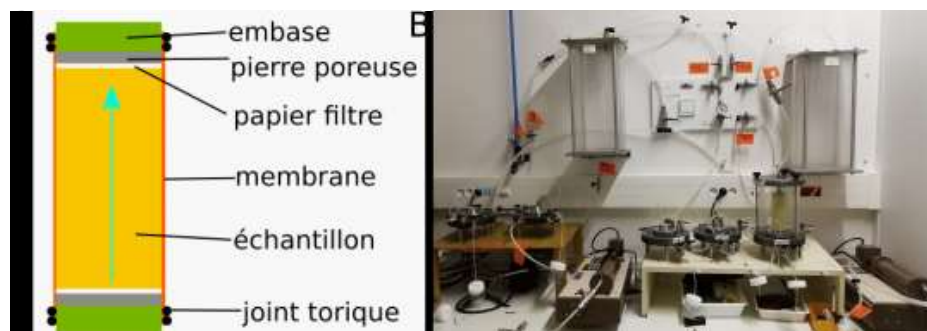
**Tableau 21 Valeurs de surfaces spécifiques d'après la littérature**

Source	roche	S <sub>s</sub> (m <sup>2</sup> /g)
(Tomachot, 2002)	grès vosgien	1,64
	grès à meules	1,95
(Rousset-Tournier, 2001)	grès de Fontainebleau	< 0,02
	micrite	1
(Fripiat et al., 1971)	montmorillonite	80
	biotite	4,5
	poudre de verre	0,3 - 0,4
(Beck, 2006)	tuffeau de Touraine	23
	calcaire de Sébastopol	1

## II. Essai de percolation

Afin de simuler une altération par circulation hydraulique dans le matériau gypseux, nous avons développé un système de percolation. Cet essai a pour but de faire traverser le fluide à des éprouvettes de gypse. Nos échantillons sont des cylindres de 5 cm de diamètre pour une hauteur de 10 cm (soit un élancement de 2).

L'échantillon est placé dans une membrane de caoutchouc, permettant d'isoler l'éprouvette de l'eau contenue dans la cellule, avec à chaque extrémité un papier filtre pour éviter que les particules fine arrachées lors de l'essai n'obstruent les orifices d'entrée et de sortie du fluide (Figure 113). L'eau pénètre à la base de la cellule et ressort après avoir traversé l'échantillon. À chaque extrémité, une pierre poreuse est ajoutée afin d'obtenir un contact homogène sur l'ensemble du diamètre de l'éprouvette.



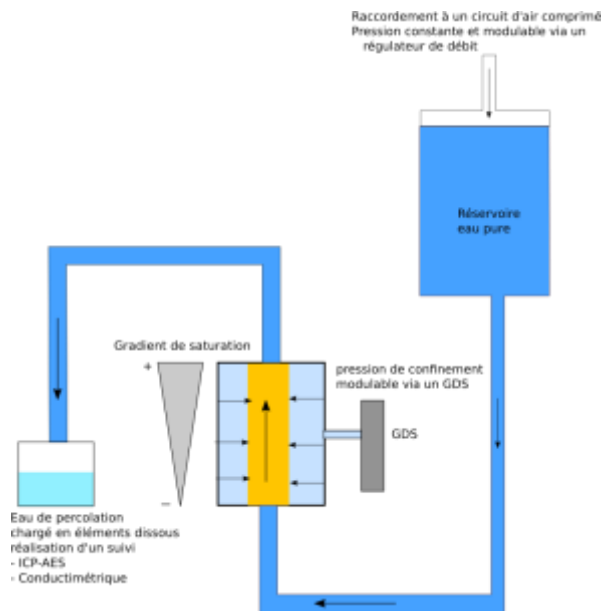
**Figure 113 A : Schéma du montage d'une éprouvette lors d'un essai de percolation. B : photographie du banc d'essai**

Afin de garantir une pression constante, nous avons raccordé le réservoir à un système d'air comprimé avec un régulateur de débit d'air LRP (Festo) pour une gamme de 0,05 à 2,5 bar (soit 1,8L/minute maximum). L'hystérésis est de 0,02 bar et la précision de 0,01 bar. En effet, la hauteur d'eau dans le réservoir diminuant au cours du temps avec le passage du fluide, la charge hydraulique n'est pas constante (Tableau 22). L'ajout de ce système permet de fixer une poussée constante et de rendre négligeable la variation due à la hauteur de la colonne d'eau.

**Tableau 22 Variation du débit du réservoir en fonction de la pression appliquée**

	Hauteurs variables du réservoir							
pression imposée (bar)	0	0	0	0.1	0.3	0.5	0.8	1
durée pour faire écouler 1.5 L (s)	120	150	130	35	30	20	15	11
débit d'écoulement (m <sup>3</sup> /s)	1.3.10 <sup>-5</sup>	1,0.10 <sup>-5</sup>	1.2.10 <sup>-5</sup>	4,3.10 <sup>-5</sup>	5,0.10 <sup>-5</sup>	7,5.10 <sup>-5</sup>	1,0.10 <sup>-4</sup>	1,4.10 <sup>-4</sup>
vitesse d'écoulement (mm/s)	3	2	2	9	11	16	21	29

Le système se compose d'un réservoir d'environ 30 L d'eau. Afin de favoriser la dissolution, nous avons réalisé les essais avec de l'eau pure (15mΩ/cm). L'absence de composition chimique initiale rend la dissolution plus agressive et accélère ainsi le phénomène de dissolution. Cela permet également de faciliter le suivi chimique des eaux de percolations (percolats), l'ensemble des éléments venant de la dissolution des éprouvettes (Figure 114). Dans le cadre de l'expérimentation, nous avons sélectionné un débit d'air relativement faible (0.3 bar) pour essayer de limiter les phénomènes de dissolutions préférentielles. La dissolution préférentielle (ou digitation) est un phénomène de dissolution non homogène pouvant amener à la mise en place de conduit, traversant l'échantillon (voir chapitre 1B). Afin que le fluide ne circule de manière qu'interne et non ruisselante entre la membrane et l'éprouvette, l'ensemble est placé dans une cellule de percolation fermée hermétiquement. Cette cellule est ensuite remplie et reliée à un CPV (Contrôleur Pression Volume) exerçant une pression latérale de 140 kPa. Cette pression supérieure à celle d'entrée dans l'échantillon maintient la membrane plaquée sur l'échantillon, imposant ainsi au fluide de passer dans la structure poreuse. Il n'y a pas de pression exercée en sortie du système (Figure 114). Ce système est assez similaire sans son approche à celui développer par (Massard and Desplan, 1980; Saad, 2011; Li et al., 2019a).



**Figure 114 Schéma du montage expérimental de percolation**

L'eau percolante est récupérée de manière continue dans des pots. Des pesées et un suivi conductimétrique des pots de collecte relevés régulièrement est effectué afin de quantifier la masse de gypse dissous et le débit d'eau percolée. La quantité dissoute est mesurée à partir de la conductivité en utilisant l'équation 3.C.1 (voir chapitre 3). Il est ainsi possible de suivre la quantité de matière dissoute, l'évolution du débit mais aussi une estimation du taux d'altération des éprouvettes par leurs pertes de matière.

Les essais de percolation ont été réalisés sur 3 faciès de gypse, un gypse matriciel pur à plus de 90% et 2 gypses saccharoïdes, dont l'un est pur à plus de 95% et le second composé de litages d'argiles et d'oxydes de fer. La teneur en gypse de ce dernier est de 70%. Les gypses massifs comme l'albastroïde et le fer de lance n'ont pas été inclus dans cet essai. En effet, lors de test de faisabilité, le gypse fer de lance a permis la percolation de l'eau mais avec des débits importants (supérieurs à 1L /H), ce qui rend le suivi des percolâts impossible à effectuer de manière pertinente. Le gypse albastroïde étant très peu poreux (<1%), il n'a pu être utilisé pour des expériences de percolation, le processus de dégradation par dissolution se faisant essentiellement sur les surfaces des fissures.

Les essais ont été réalisés pour 4 pas de temps soit 1 semaine, 2 semaines, 1 mois et 2 mois. Chaque pas de temps a été appliqué sur un lot de 3 éprouvettes de gypse avec un faciès donné, éprouvette jugées 'similaires'. Un nouveau lot est testé pour chaque pas de temps. Au total 12 éprouvettes ont été testées par faciès, soit 36 éprouvettes.

Les éprouvettes utilisées ont été caractérisés hydro mécaniquement via les essais précédemment décrits (porosimétrie à l'eau, vitesse du son, DRX...) avant et après essais afin de suivre l'évolution des différents paramètres retenus pour cette étude.

### III. Essai de dissolution sur disque plan de gypse

En parallèle des essais de dissolution sur poudre, il a été effectué des essais de dissolutions sur disque. L'objectif de cet essai est de comparer les taux de dissolutions obtenues sur poudre à une échelle supérieure. Les disques utilisés sont des éprouvettes de gypse de diamètre 50 mm et d'une épaisseur de 2 cm environ. Ces disques sont pris dans une résine époxy pour ne permettre la dissolution que sur une face. Afin de limiter la pénétration de la résine avant sa prise dans la porosité, les disques sont recouverts d'une couche de vernis. Les disques sont ensuite polis avec des disques abrasifs de 500 à 2000 grains/cm<sup>2</sup> avec un lubrifiant (éthanol). L'ensemble est monté sur une tige relié à un moteur permettant une rotation contrôlée et fixe. Le montage est placé dans un bécher d'eau pure maintenu à 25°C par un bain marie (Figure 115). La dissolution du disque est suivi en continu via une sonde conductimétrique et les paramètres de dissolution déterminés suivant la même procédure que pour les essais sur poudre.

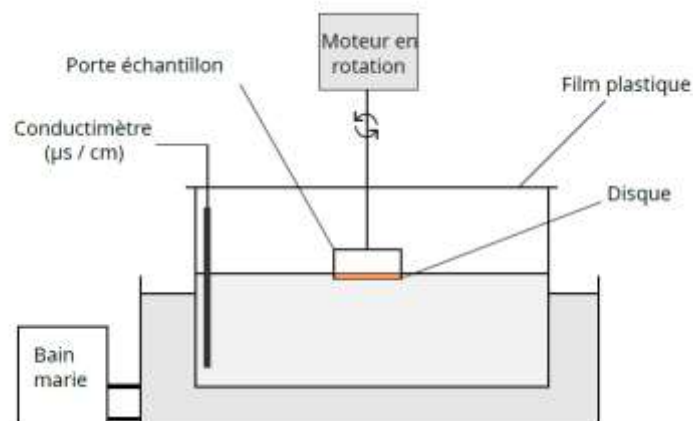


Figure 115 Représentation du dispositif de disque tournant (Ouabel, 2022)

Cette méthode permet également l'observation de la surface du disque après essai via le microscope numérique VHX-7000N (Keyence) permet une observation 3D jusqu'à un

grossissement de x 2000. Cet appareil peut générer des images à profondeur de champs ainsi que des cartographies 3D. Il dispose également de la possibilité de quantifier la rugosité pour une surface donnée et de tracer des profils de rugosité (Figure 116) Il a ainsi été possible de cartographier et suivre l'évolution de surface dissoute de manière qualitative et quantitative.

La rugosité sera quantifiée à partir de plusieurs paramètres tel que

- $S_a$  : moyenne arithmétique de hauteur. Soit la valeur moyenne des valeurs absolues de chaque hauteur en tout point de la surface.
- $S_z$  : hauteur moyenne. Soit la somme de la hauteur maximale de pic et de la profondeur maximale de vallée.
- $S_q$  : hauteur quadratique moyenne. Hauteur quadratique moyenne en chaque point de la surface. il s'agit de l'équivalent à l'écart type.
- $S_{sk}$  : Asymétrie. Moyenne cubique de hauteur avec  $S_q$  au cube. Propriétés d'asymétrie de la surface considérée par rapport à la surface de référence. Si  $s_{sk} = 0$  la distribution est symétrique. Si  $s_{sk} >$  ou  $<$  0, alors la distribution est de hauteur est asymétrique par rapport au plan de référence
- $S_{ku}$  : aplati de distribution de la hauteur. Soit la moyenne de la hauteur  $S_q$  élevée à la puissance 4. Si  $S_{ku}$  est égal à 3 alors la distribution de hauteur suit une loi normale. Sinon la distribution est affaissée ( $<3$ ) ou accentuée ( $>3$ ).
- $S_p$  : hauteur maximale de pic. Soit la hauteur du point le plus élevée.
- $S_v$  : profondeur maximale de vallée. Valeur absolue du point le plus bas.

$$S_z = S_p + S_v$$

$$S_a = \frac{1}{A} \iint |z(x,y)| dx dy$$

$$S_q = \sqrt{\frac{1}{A} \iint z^2(x,y) dx dy}$$

$$S_{sk} = \frac{1}{S_q^3} \left[ \frac{1}{A} \iint z^3(x,y) dx dy \right]$$

$$S_{ku} = \frac{1}{S_q^4} \left[ \frac{1}{A} \iint z^4(x,y) dx dy \right]$$

$$S_p = \left| \max_A z(x,y) \right|$$

$$S_v = \left| \min_A z(x,y) \right|$$

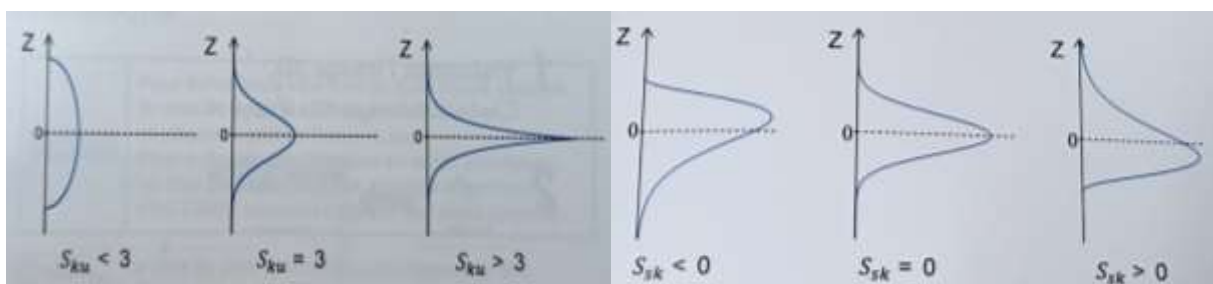
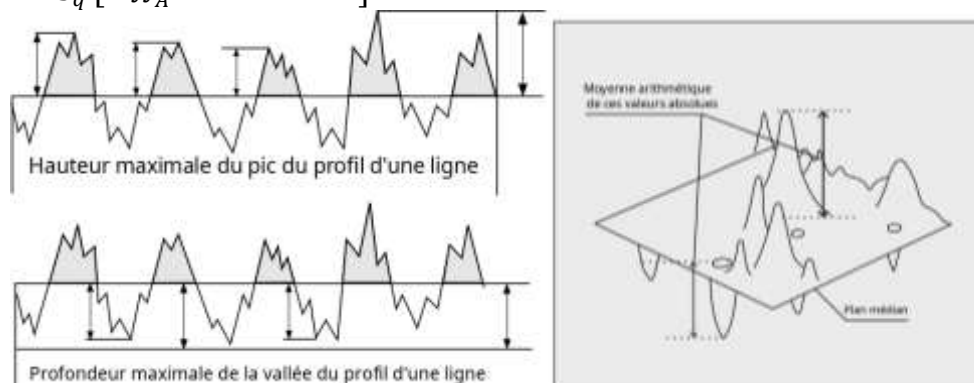


Figure 116 Schéma représentant les différents paramètres de la rugosité. Source (Keyence)

#### IV. Développement d'un essai de dissolution sur plaque

L'essai mis au point consiste à faire s'écouler une lame d'eau sur une surface de gypse poli. L'essai a lieu de manière verticale et une pompe péristaltique contrôle le débit d'eau entrant dans une chambre d'essai. Le débit est ainsi maintenu constant et déterminé via le voltage de la pompe (Figure 117). Cette chambre est composée d'une plaque de plexiglas où est collé un rectangle de néoprène d'une épaisseur de 1 mm. La chambre fait 4,2 cm de large par 6,5 cm de haut. Le fluide s'écoule ainsi à la surface de la plaque de gypse et va entraîner une altération. Une dissolution hétérogène est l'objectif recherché pour observer la formation de chemin préférentiel, identifier les éléments présent avant la mise en place de ce chemin. L'objectif est de rechercher un facteur qui induirait la dissolution préférentiel (insoluble, hétérogénéité granulaire...). La chambre est préalablement saturée pour ne pas créer de gradient de dissolution verticale.

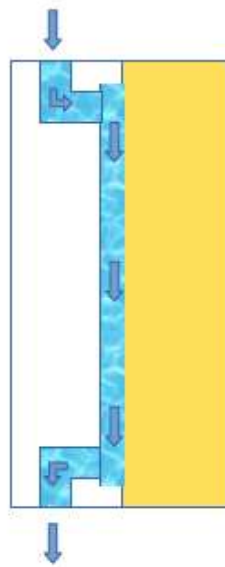


Figure 117 Schéma du principe de l'essai de dissolution sur plaque.

Le volume d'eau percolé est ensuite récupérée et sa conductivité mesurée pour obtenir via la même procédure que pour les essais sur poudre une quantité de gypse dissous. La surface est quant à elle cartographiée et observé au microscope Keyence de la même manière que les essais sur disques.

Afin de visualiser l'évolution de la surface d'un échantillon de gypse soumis à la dissolution, un essai de dissolution sur plaque a été développé. Cet essai consiste à simuler un écoulement d'eau entre une plaque de gypse poli et une plaque de plexiglass. L'écoulement a lieu dans un espace délimité sur le pourtour par une bande de néoprène d'une épaisseur de 1 mm. Le débit d'eau pure introduit est régulé en entrée par une pompe péristaltique et est fixé à  $5,5 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$ . Ce débit permet de maintenir la chambre de dissolution remplie d'eau sans que la pression ne soit trop forte (ce qui peut engendrer des fuites latérales).

Chaque cycle de dissolution est effectué avec un volume d'eau circulée d'environ 10L. Une fois le cycle terminé, le pavé est sorti de la chambre et est cartographié via un microscope optique (numérique) à profondeur de champ pour déterminer l'évolution des paramètres de rugosité. Des observations complémentaires sont effectuées pour l'interprétation des effets de l'écoulement sur l'échantillon.

## D. Conclusions

Ce chapitre présente les six faciès de gypse utilisés dans ce travail de thèse. Cette description de la localisation, du contexte géologique et la diversité du gypse au niveau de ses cristaux, de leurs agencements et de leurs textures. Dans le chapitre précédent, il a été discuté la large variabilité du gypse au niveau de ces propriétés (porosité de 0 à 20% ; résistance mécanique de 10 à 50 MPa ...). Cette diversité apparaît comme un critère important dans l'étalement de ces valeurs bien que les faciès soient peu mentionnés dans la littérature. La caractérisation de nos échantillons, l'analyse de leurs textures et structures constitue un premier enjeu pour mettre en évidence l'intérêt d'une classification du gypse ou a minima de prendre en compte d'une manière plus fine les faciès considérés dans les études pour leurs caractérisations. La sensibilité du gypse à la dissolution en profondeur et non pas seulement par régression de surface constitue une interrogation importante. Le montage expérimental de percolation vise ainsi à définir quelle est l'évolution des paramètres en entrée de modèle (porosité, module élastique...) et leurs évolutions dans le temps. Cette campagne expérimentale permettra ainsi de comparer les résultats numériques avec des valeurs expérimentales pour le modèle HMC proposé dans ce travail. La formation de gradient de dissolution, leurs profondeurs sont également des informations nécessaires à la dégradation du gypse et à la formation des structures parakarstiques (chemins préférentiels).

Le gypse est comme l'ensemble des évaporites une roche à forte solubilité et cinétique de dissolution rapide. La détermination de ces paramètres pour l'élaboration d'un modèle HMC est primordiale. Il est donc mise en œuvre un programme expérimental varié pour étudier à l'échelle du grain et de la surface la cinétique de dissolution du gypse et l'effet des conditions physico-chimique.

L'ensemble des mesures expérimentales effectuées en fonction des typologies d'échantillons (éprouvettes, poudres...) est synthétisé dans la Figure 118 sous la forme d'un diagramme et dans le Tableau 23.

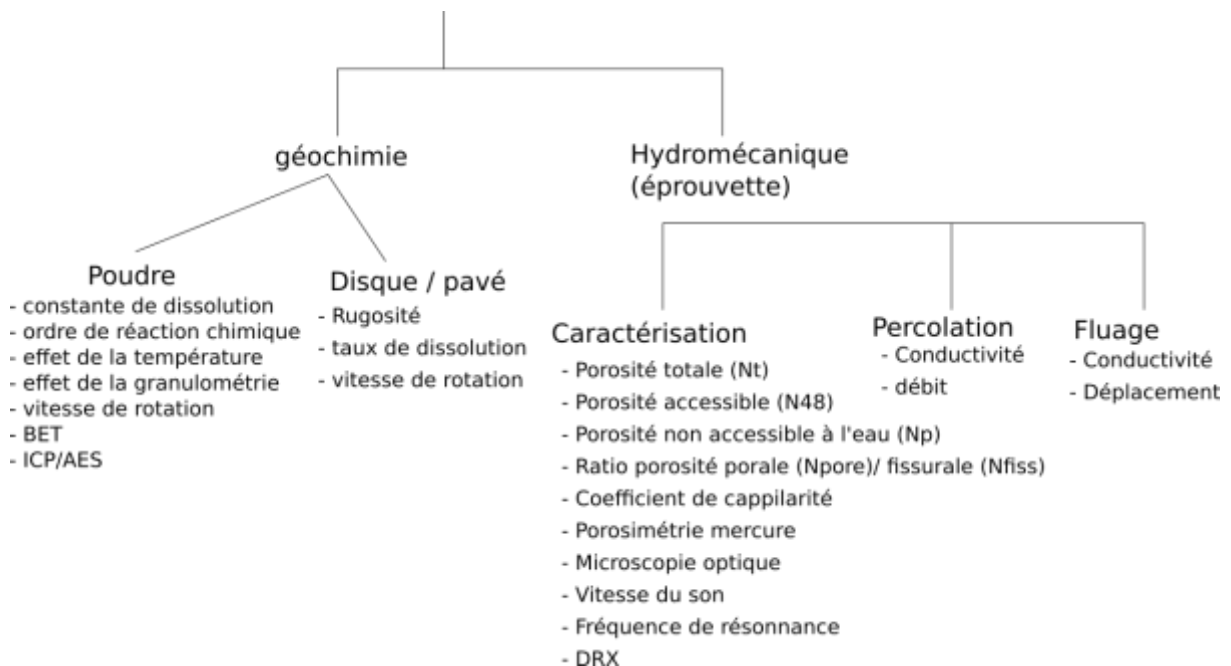


Figure 118 Diagramme synthétique des essais réalisés



Tableau 23 Tableau synthétique des quantités d'échantillons utilisés

Faciès gypseux	dimension (cm)	quantité					
		gypse matriciel	Gypse saccharoïde pur	Gypse saccharoïde à interlits	Gypse fer de lance	Gypse albastroïde	Gypse orogénique
Caractérisation							
Porosimétrie à l'eau	éprouvette 5 * 10 cm	30	30	30	7	7	10
Vitesse du son		30	30	30	7	7	10
Fréquence de résonance		30	30	30	7	7	10
Coefficient d'imbibition capillaire		30	30	30	7	7	10
Résistance en compression		30	30	30	7	7	10
Essai de fluage		3	3				
Porosimétrie par intrusion de mercure	fragments	3	3	3	3	3	3
Lame mince	//	1	1	1	1	1	1
Altération par percolation							
Porosimétrie à l'eau	éprouvette 5 * 10 cm	3	3	3			
Vitesse du son		3	3	3			
Fréquence de résonance		3	3	3			
Coefficient d'imbibition capillaire		3	3	3			
Résistance en compression		1	1	1			
nanoindentation	pavé de 4*4*10	1	1	1			
Cinétique de dissolution							
Dissolution sur poudre	0,02 / 0,05 cm	18	18	18	18	18	
	0 / 0,02 cm	12	12	12	12	12	
Dissolution sur disque	diamètre 5 cm	3	3	2			
Dissolution sur pavé	30*30*4	3	2	1			

## **Chapitre 3 Résultats expérimentaux**



## Introduction

Dans ce chapitre, l'ensemble des résultats expérimentaux obtenus dans ce travail de thèse sont présentés. Les résultats sont organisés en trois parties :

- La première partie se focalise sur la caractérisation poromécanique des différents faciès de gypse étudiés tant du point de vue de la morphologie, que des propriétés poromécaniques (vitesse du son, porosité à l'eau, porosimétrie mercure...). Une attention particulière est portée à la porosité et à sa structuration (taille de pore, volume total, accessible ou non ...). Les propriétés mécaniques sont également quantifiées par des méthodes non destructives et complétées par une série d'essais de compression uniaxiale. L'intérêt est de montrer la variabilité des faciès de gypse souvent délaissée et peu abordée dans les études sur le gypse. Ce dernier est régulièrement cité sous l'appellation générale de « gypse » complétée par son origine géographique. À terme, des classifications sur les faciès de gypse comme celles proposées pour les roches carbonatées, par exemple Folk, (1959) ou Dunham, (1962), pourraient être développées. Les observations microstructurales permettent d'évaluer si un écoulement à travers des éprouvettes de gypse est possible et de définir les paramètres initiaux du modèle numérique développé dans le chapitre 4.
- Pour analyser les effets du passage de l'eau dans un matériau gypseux, un montage expérimental de cellules de percolation original a été mis en place. Seuls trois faciès ont été retenus à savoir les gypses matriciels, saccharoïde purs et à interlits pour les expériences de percolation. Les faciès albastroïdes et orogéniques ne disposent pas d'une porosité connectée ou suffisante pour permettre à l'eau de traverser l'éprouvette. A l'inverse le gypse fer de lance avec ces macro-cristaux accolés avec une forte porosité interne permet un écoulement préférentiel rapide de l'eau, sans possibilité de mesure représentative des eaux de percolations ou de la dissolution lors de l'essai en cellule de percolation. Les résultats des essais de percolation sont présentés dans la seconde partie de ce chapitre, avec notamment le suivi des débits de percolation et la saturation des percolats en éléments dissous, pour évaluer l'évolution interne du matériau, par exemple l'augmentation de la vitesse d'écoulement avec l'augmentation de porosité et la réduction de la saturation avec la réduction du temps de contact. L'analyse de l'évolution des propriétés poromécaniques des faciès étudiés par rapport aux caractéristiques initiales est effectuée après des temps de percolation de 1, 2 semaines, 1 et 2 mois. Il s'agit de montrer la mise en place plus ou moins nette d'un gradient d'altération à l'échelle de l'éprouvette. Cette analyse s'appuie sur la caractérisation (notamment via des mesures de porosimétrie mercure) de sections fines d'éprouvettes prises sur toute la hauteur pour estimer la zone où se développe le gradient d'altération des propriétés avec le temps. Ces données permettront de montrer l'effet de la dissolution sur la structure poreuse des faciès du gypse avec notamment la mise en place de chemin préférentiel. Cette expérience de dissolution en cellule de percolation permet au final de suivre l'évolution des paramètres poromécaniques décrits dans la partie précédente. Ce suivi permettra de définir la faisabilité d'un écoulement au travers du gypse, de la mise en place d'un gradient d'altération et sa profondeur. De plus, les résultats de cette expérience constitueront un premier cas de modélisation pour évaluer les équations proposées dans la partie numérique. L'évolution des valeurs de la porosité, du diamètre de pore... pourront également être mis en relation pour définir l'évolution des paramètres du modèle.
- Dans un troisième temps, les résultats sur la cinétique de dissolution du gypse ( $k_s$  et  $n$ ) seront présentées avec une attention particulière à la température et la vitesse d'agitation sur ces constantes et les différences en fonction des faciès. Un intérêt sera également

porté à l'évolution de surface d'échantillons de gypse soumis à la dissolution pour mieux appréhender le phénomène de chemin préférentiel décrit en bibliographie et ayant impacté les faciès saccharoïdes. Ces essais ont été réalisés sur des disques inclus dans une résine et sur des essais de plaques dont le montage a été mis au point dans le cadre de ce travail.

## A. Caractérisation des gypses étudiés

Les faciès de gypse échantillonnés ont été caractérisés, avec un intérêt particulier porté à la structure des pores. Les propriétés physiques (module d'élasticité) sont étudiées à l'aide de la mesure de la vitesse du son, de la fréquence de résonance permettant de définir des modules d'élasticité dynamique ( $E_{dyn}$  et  $E_{mod}$ ). Des essais de compression ( $R_c$ ) sont effectués pour déterminer le module élastique statique ( $E_{stat}$ ). La composition minéralogique par analyse DRX des faciès gypseux fait l'objet d'une quantification afin d'alimenter les discussions sur la dissolution des matériaux étudiés avec le rôle potentiel des phases secondaires autres que le gypse dans la dissolution. Des analyses chimiques élémentaires des échantillons des différents faciès complètent cette analyse minéralogique. Cette partie met ainsi en évidence les variations de propriétés poromécaniques du gypse en fonction des faciès.

### I. Caractérisation minéralogique des faciès gypseux

La teneur en gypse des roches étudiées ainsi que les autres formes minérales susceptibles de se dissoudre, sont identifiées et quantifiées par diffraction des rayons X sur poudre couplé à l'analyse Rietveld. Les résultats sont synthétisés sur la Figure 119.

En complément des mesures DRX, une analyse chimique élémentaire, présentée en pourcentages d'oxydes pour les majeurs, a été réalisée pour les gypses matriciel, saccharoïde pur et à interlits. (Tableau 24 pour les éléments majeurs et Tableau 25 pour les éléments mineurs quantifiés). Les faciès albastroïdes, orogénique et fer de lance ont été intégrés ultérieurement à l'étude et caractérisés uniquement par méthode DRX.

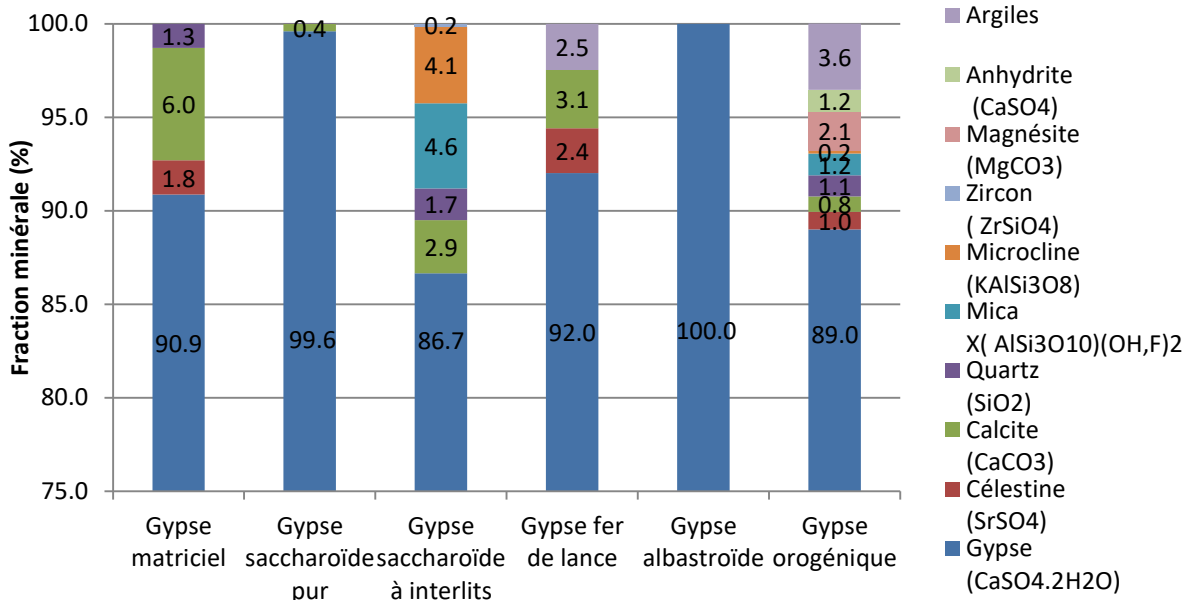


Figure 119 Résultats de l'identification et de la semi-quantification des phases minéralogiques cristallisées par diffraction des rayons X.

L'ensemble des échantillons présentent une teneur en gypse supérieure à 85%. Les gypses d'Ile-de-France (matriciel, saccharoïde pur, albastroïde et « fer de lance ») présentent plus de

## CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

90% de gypse. Les principaux minéraux secondaires sont la calcite  $\text{CaCO}_3$ , la célestine  $\text{SrSO}_4$  et le quartz  $\text{SiO}_2$ . La solubilité de ces différents minéraux est donnée dans le (Tableau 26).

**Tableau 24 Proportions des éléments majeurs ramenés en pourcentage d'oxydes dans les gypses étudiés. PF : perte au feu à 1000°C**

	SiO2 (%)	Al2O3 (%)	Fe2O3 (%)	MgO (%)	CaO (%)	K2O (%)	TiO2 (%)	PF	total
Gypse matriciel	2.25	0.26	0.11	0.59	32.20	0.06	< L.D.	23.2	58.7
Gypse saccharoïde pur	0.65	0.06	0.02	0.24	32.61	< L.D.	< L.D.	22.7	56.3
Gypse saccharoïde à interlits	5.10	1.48	0.41	1.35	31.03	1.11	0.069	29.7	70.2

**Le gypse matriciel** présente une teneur de 6% de calcite, dont les grains en microscopie optique sont micrométriques et dispersés dans la roche (voir point suivant). Les autres minéraux présents dans le gypse matriciel sont le quartz (du sable) et la célestine, un sulfate de strontium dense et non soluble contrairement au gypse. La célestine ( $\text{SrSO}_4$ ) est un minéral évaporitique fréquemment rencontré avec le gypse. La présence de la célestine est confirmée par la détection de strontium (Sr) par ICP (Tableau 25). L'analyse chimique met également en évidence la présence de deux autres éléments mineurs. Le zirconium (Zr) qui est à l'origine des zircons et le baryum (Ba). Ces éléments sont fréquemment rencontrés en association avec les sulfates dans les milieux naturels et forment de la célestine ( $\text{SrSO}_4$ ) et de la barytine ( $\text{BaSO}_4$ ). La barytine et la célestine présentent des solubilités très faibles (0,01 g/L pour la célestine à 20°C (Poonosamy et al., (2019) et de 0,02 g/L pour la barytine à 20°C (Natasha et al., 2023)). La prédominance du gypse est confirmée par la forte teneur en calcium et soufre exprimé. La présence de phase argileuse semble confirmée par la quantification d'oxydes tels que  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{K}_2\text{O}$ ... qui représentent 0,32 % de la masse totale, cette faible proportion, étant non détectée en DRX. La soustraction de cette phase argileuse à la proportion de silicates estimée donne une teneur de quartz de 1,9%, ce qui est conforme à la détection en DRX. Les teneurs en fer ( $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ) et en magnésium (MgO) correspondent respectivement à des oxydes de fer et de la dolomite.

**Le gypse saccharoïde pur** est quant à lui composé presque exclusivement de gypse et de quartz. Comme pour le gypse matriciel des microcristaux de calcite observés en microscopie optique sont présents. L'analyse ICP confirme cette quantification en ne mettant en évidence les éléments majeurs (autre que le CaO) qu'à des teneurs très faibles, donc des minéraux dispersés et en faible nombre. La célestine apparaît présente par la mesure du strontium via l'analyse ICP, mais pas par DRX. La célestine est visualisable par quelques minéraux disséminés au microscope optique (voir point suivant). L'analyse ICP permet de détecter une teneur de 0,6 % de quartz et argiles en quantités minimales (0.06% pour  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , 0,02% de  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  et 0,24 % de MgO).

**Le gypse saccharoïde à interlits** est le matériau avec la plus faible teneur en gypse des 3 faciès étudiés, soit 86,7%. Le reste se compose de calcite ayant pu précipiter de manière synchrone ou postérieure au gypse. Le quartz, les micas et les feldspaths de type microcline sont des minéraux secondaires apportés par l'érosion de massif montagneux. Les minéraux tels que la tourmaline ou le zircon visualisé au microscope optique n'apparaissent pas dans l'analyse DRX car en quantité inférieure à 1%. Les argiles et oxydes de fer dont la présence est observée macroscopiquement et sur les lames minces ne sont pas ou peu quantifiables (de l'ordre de la trace à quelques %). Ces produits sont issus de l'altération des minéraux tels que les micas (phlogopite ...). La quantification des éléments chimiques donne un résultat similaire avec 2,6% d'éléments argileux en solution et 2,5% de quartz. La célestine est présente (567  $\mu\text{g/g}$ ) en faible quantité tandis que la barytine et le zircon sont présents à l'état de traces. Ces minéraux ont des constantes de solubilité plus faibles que le gypse et

## CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

participeront de manières faibles, voire nulle à la dissolution dans les expériences de percolation et de dissolution sur poudre. En revanche, une forte dissolution du gypse enserrant ses éléments pourrait conduire à leurs dispersions, notamment les fractions fines argileuses. Les ions en solution dans les percolats seront donc quasi exclusivement issus de la dissolution du gypse.

**Tableau 25 Proportions des éléments mineurs détectés par méthode ICP dans les gypses étudiés.**

	Ba (µg/g)	Sr (µg/g)	Zr (µg/g)
Gypse matriciel	153	8905	6.15
Gypse saccharoïde pur	6.0	485	< L.D.
Gypse saccharoïde à interlits	18.5	567	10.9

**Le faciès « fer de lance »** a quant à lui une teneur en gypse de 92%, complétée par de la célestine, de la calcite et des argiles. Ces minéraux sont peu ou pas solubles.

Le **gypse albaströide** a une teneur en gypse de 100% et ne présente pas de phase secondaire, ce qui est cohérent avec les observations microscopiques décrites ci-après (voir point suivant). Les inclusions microscopiques décrites sur les lames minces présentées dans la suite de ce chapitre pourraient correspondre à des restes d'anhydrite ou de calcite présente en très faible quantité et donc difficilement détectable.

Le **gypse orogénique** est le faciès avec la plus grande diversité minéralogique malgré une teneur de 89% de gypse. Les 11 % restant se composent principalement de magnésite ( $MgCO_3$ ) (2.1%), de célestine (0.95%) et de calcite (0.82%) ainsi que d'un résidu d'anhydrite ( $CaSO_4$ ) issue du compactage de la roche et d'éléments de quartz. Des minéraux accessoires issus de l'érosion de massif cristallin proche et transportés sont également présents comme du zircon, des micas ou du microcline. Enfin une phase argileuse (soit 3,6%) correspond à l'altération de ces minéraux et notamment des micas.

**Tableau 26 Solubilité des principaux minéraux identifiés dans les faciès de gypse.**

Minéral	Solubilité (g/L) (t°)	Références	Minéral	Solubilité (g/L) (t°)	Références
Gypse	2,5 à 25°C	(Zaier, 2021)	Barytine	0,02 à 20°C	(Natasha et al., 2023)
Calcite	0,014 à 25°C (eau pure)	(Ek, 1973)	Quartz	0,12 à 25°C	(Rimstidt, 1997)
Dolomie	0,0055 à 25°C	(Zaier, 2021)	Anhydrite	2,7 à 25°C	(Bock, 1961)
Halite	360 à 20°C	(Golfier, 2001)	Zircon	0,001 à 1025°	(Bernini et al., 2013)
Célestine	0,0114 à 20 °C	(Poonoosamy et al., 2019)	Feldspath	0,015 à 750°C	(Yang, 2012)

### II. Caractérisation de la porosité

Afin de mieux comprendre le processus de dégradation des roches gypseuses, la porosité doit être caractérisée et quantifiée. Plusieurs méthodes sont appliquées : la porosimétrie à l'eau (méthode de la triple pesée), la porosimétrie par intrusion de mercure et une estimation de la porosité par microscopie optique sur des lames minces (bien qu'en 2D). Ces différentes méthodes permettent de définir la structure porale des faciès gypseux et d'estimer si un écoulement est susceptible de se produire au travers des matrices. Des essais d'imbibition capillaire ont également été effectués pour compléter cette analyse et les résultats, ce paramètre étant conditionné par la porosité et sa structure.

**1) Observation pétrographique des gypses étudiés et de leur porosité**

**Le gypse matriciel** observé en lumière polarisée non analysé (LPNA) est principalement composé, comme sa dénomination l'indique, d'une matrice blanchâtre à grisâtre avec des éléments de taille micrométrique (Figure 120A). Cette matrice enserme des particules de gypse subautomorphes à xénomorphes. La morphologie des cristaux est majoritairement allongée à bord sphérique (lenticulaire) (Figure 15, chapitre 1), quelques fois sphérique pour certains éléments (Jaworska, 2012). La taille de ces éléments granulaires est de 0,4 mm en moyenne mais reste assez hétérogène, allant de 0,1 à 0,7 mm (Figure 120B), ce qui donne un tri moyen à faible dans les dimensions des grains. L'observation des éprouvettes à l'œil nu (voir chapitre 2.A) met en évidence des zones exclusivement matricielles et des zones intégrant des cristaux de 1 à 2 millimètres. La délimitation entre ces zones est assez nette et rectiligne comme symbolisé par le trait rouge sur la Figure 120C. Elle ne laisse toutefois pas apparaître de stratification marquée avec une texture homogène sur les éprouvettes.

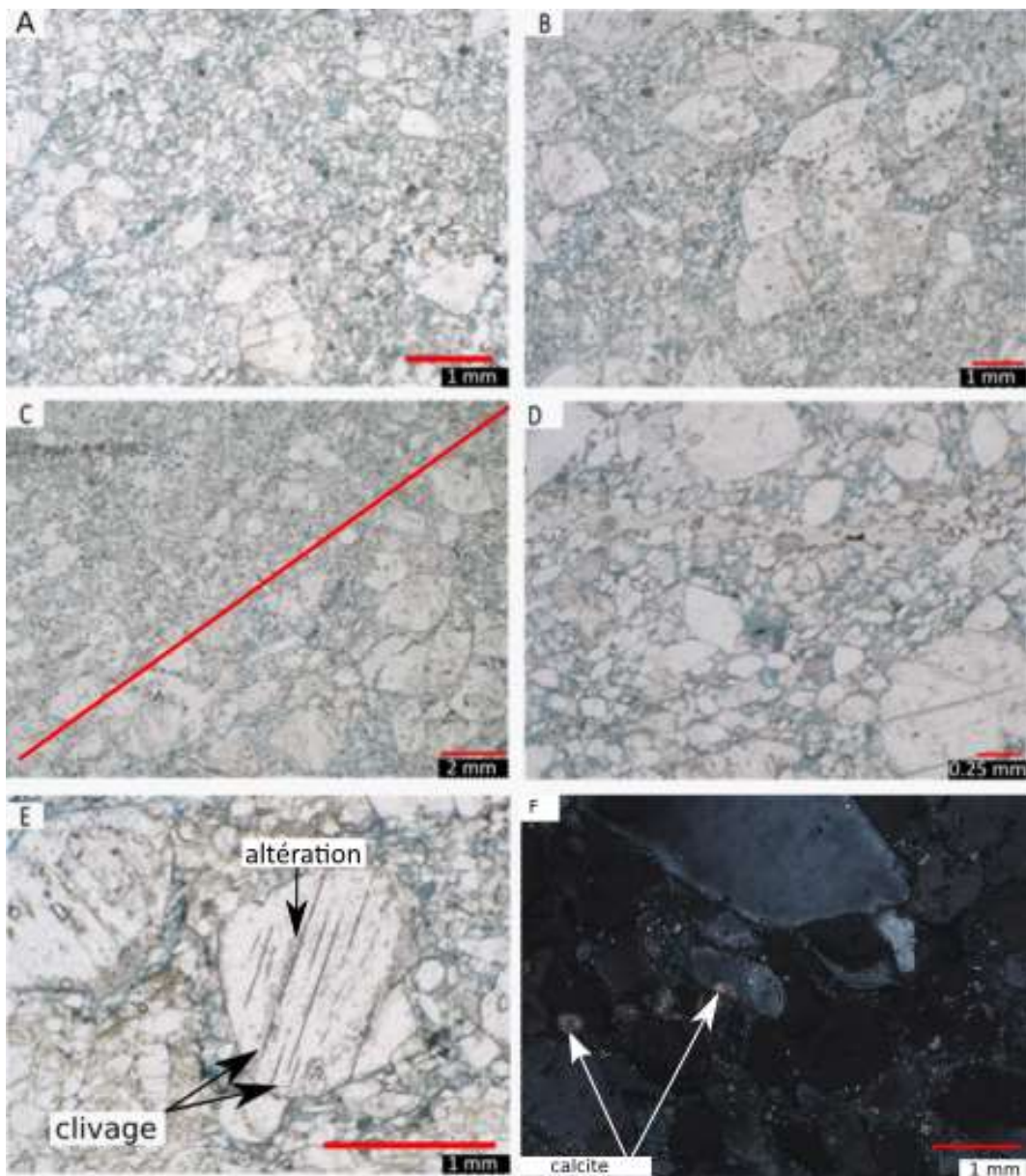


Figure 120 Observation au microscope optique de lame mince pétrographique du gypse matriciel ; A : Vue générale à x20. B : Zone de macrocristaux x30 LPNA C : différence de densité x20. D : porosité dans la matrice x100 LPNA. E : Altération x100. F vue de la calcite LPA x100.



## CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

La porosité observée au microscope optique avec la résine colorée en bleu est principalement micrométrique et répartie de manière homogène au sein de la matrice (Figure 120D). Quelques pores de 40 µm sont localement visibles mais peu présents à l'échelle des lames réalisées (6x4,5 cm). La porosité par traitement d'image n'est pas distinguable de la matrice, les deux se confondant (Tableau 27).

Les cristaux de gypse observés présentent de nombreuses traces d'altération sur leurs pourtours et à l'intérieur des plans de clivage (Figure 120E). Le passage en lumière polarisée analysée (LPA), révèle ponctuellement des phases minérales dans la matrice polarisant dans les teintes du 3<sup>ème</sup> ordre. Il s'agit de calcite dont l'origine synsédimentaire ou parasédimentaire n'a pu être déterminée (Figure 120F). Ces minéraux sont de l'ordre de quelques dizaines de microns au maximum. Le quartz dont la présence a été mise en évidence par la diffractométrie à rayons X est difficilement distinguable du gypse, leurs propriétés optiques étant très proches. Ponctuellement des extinctions roulantes typiques de ce minéral sont observables. Les éléments quartziques se composent de grains xénomorphes de quelques dizaines de microns.

**Tableau 27 Estimation de la porosité à partir d la pétrographique.\* matrice et porosité non différenciées**

	<b>Gypse matriciel</b>	<b>Gypse saccharoïde pure</b>	<b>Gypse saccharoïde à interlits</b>	<b>Gypse albastroïde</b>	<b>Gypse fer de lance</b>	<b>Gypse orogénique</b>
Porosité (%)	40*	15	6.0	3.0	6.3	1.1

**Le gypse saccharoïde pur** de couleur ocre à l'échelle macroscopique présente des minéraux incolore et translucide en lumière polarisée non analysée (LPNA). La lame présente un aspect homogène sans indice de stratification (Figure 121A). Les minéraux sont de formes subautomorphes à xénomorphes. Les éléments de gypse sont sous la forme de losange et présentent des bordures plus arrondies (lenticulaire) par rapport aux grains observés sur la lame de gypse matriciel (Jaworska, 2012). Leurs dimensions vont de 200 à 400 µm. Quelques cristaux plus grossiers dont les dimensions peuvent atteindre 800 µm sont disséminés sur la lame mais restent peu nombreux. Le passage en lumière polarisée analysée (LPA) révèle une lame polarisant majoritairement dans le premier ordre (Figure 121B), ce qui est cohérent avec une composition avec 99% de gypse et quelques grains de quartz. Des micro-grains de calcite comme pour le gypse matriciel sont également présents (Figure 121C). Ils se localisent dans les zones d'altérations notamment dans les plans de clivage (Figure 121D). **Cette observation laisse supposer que l'eau dissout les grains sur l'ensemble de la surface et a une action préférentielle au niveau des clivages.**

Quelques amas amorphes et incolores dans l'espace intergranulaire (Figure 121E) sont assimilés à une phase de liaison gypseuse d'après leur polarisation dans le premier ordre. Ces amas présentent des caractéristiques d'un ciment gypseux. La dissolution de ces éléments devrait conduire à la désolidarisation des grains et faciliter l'altération des éprouvettes par arrachement granulaire. La porosité sur la Figure 121F apparaît en bleu comme bien connectée. Le traitement d'image permet une estimation de la **porosité à 15%** sur l'ensemble de la lame en 2D. Cela surestime légèrement la porosité par rapport à la porosité à l'eau mais est concordant vis-à-vis de la porosimétrie mercure, qui est des volumes quantifiés en 3D (Tableau 27).

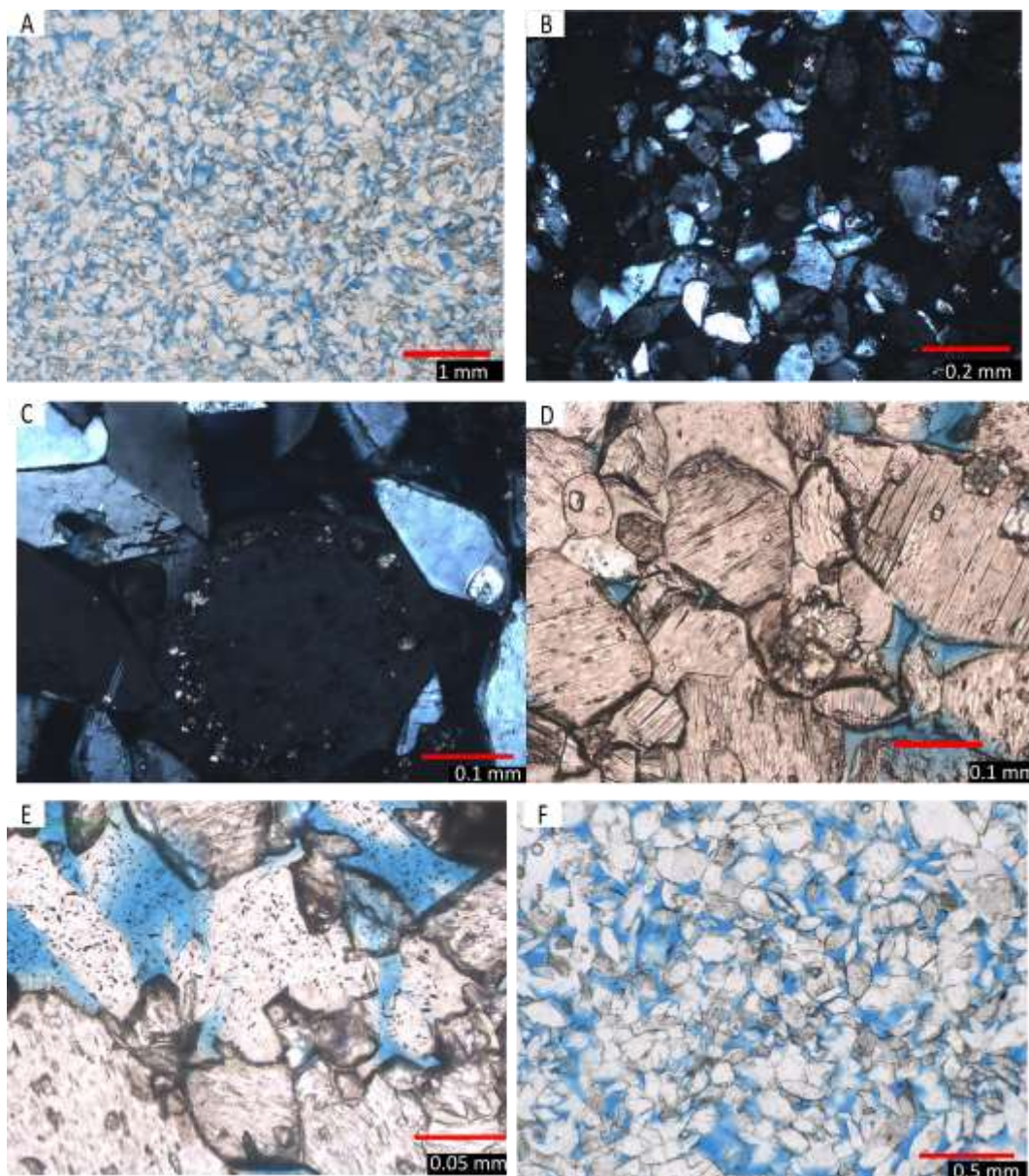


Figure 121 Observation au microscope optique de lame mince pétrographique du gypse saccharoïde pur. A : vue générale de la lame (x20, LPNA). B : Vue générale avec mise en évidence de bioclastes (x50, LPA). C: Micro-grains de calcite dans les zones altérées du gypse (x200, LPA). D : Altérations le long des clivages du gypse (x 200, LPNA). E : Phase de liaison (x400, LPNA). F : Visualisation de la porosité en bleu (x100, LPNA).

Dans le chapitre précédent, le **gypse saccharoïde à interlits** a été décrit au niveau macroscopique comme une masse de gypse blanche à intercalation de couleur brun-ocre correspondant à des argiles et oxydes de fer, d'environ 1 millimètre. Cet interlitage est également visible en lame mince avec des zones plus sombres en lumière polarisée non analysée (LPNA) que les zones gypseuses transparentes (bas de la Figure 122A et Figure 122D). Cette teinte noire correspond à des minéraux noirs micrométriques et xénomorphes. Il s'agit des argiles et des oxydes de fer libérés par l'altération des micas (phlogopite, biotite), visible en baguette allongés de 0,5 mm de long sur 0,2 mm de large. Ces minéraux ont été également identifiés en DRX. Le passage en LPA provoque une extinction partielle des micas (Figure 122B), signent de leurs altérations, les zones « saines » polarisant dans le 2<sup>ème</sup> ordre.

Les cristaux de gypse apparaissent blanchâtres et majoritairement xénomorphes (Figure 122A et Figure 122C). Ils ont une taille moyenne de 250 µm avec des éléments allant de 100 à 600

### CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

$\mu\text{m}$ , l'écart type estimée est de  $150 \mu\text{m}$ . Les éléments gypseux montrent des traces d'altération importante sous la forme de "bords rongés" et se développant le long des plans de clivage. Des micro-grains de calcite polarisant dans les teintes du 3<sup>ème</sup> ordre sont visibles comme pour les lames précédentes au sein des zones altérées. La porosité est présente sur l'ensemble de la lame mince mais semble légèrement plus développée au niveau des interlits (Figure 122C et Figure 122D). Le traitement numérique permet une estimation de la **porosité à 6%** (Tableau 27) vis-à-vis de la surface de la lame. Par ailleurs, on observe deux types de structure de pores. Le premier type est constitué de capillaires fins entre les grains et entre les faces longitudinales, avec une taille de l'ordre de  $10 \mu\text{m}$  de largeur environ. Le deuxième type est constitué de pores intergranulaires dont le diamètre est souvent supérieur à  $100 \mu\text{m}$ . Ces dimensions semblent en accord avec le résultat de la mesure par porosimétrie mercure. De plus, parmi les minéraux observés, on identifie des microclines présents de manière éparse sur la lame, des zircons ou encore des tourmalines (Figure 122E et Figure 122F). Des grains de quartz sont également présents mais difficilement différenciables du gypse comme précédemment expliqué.

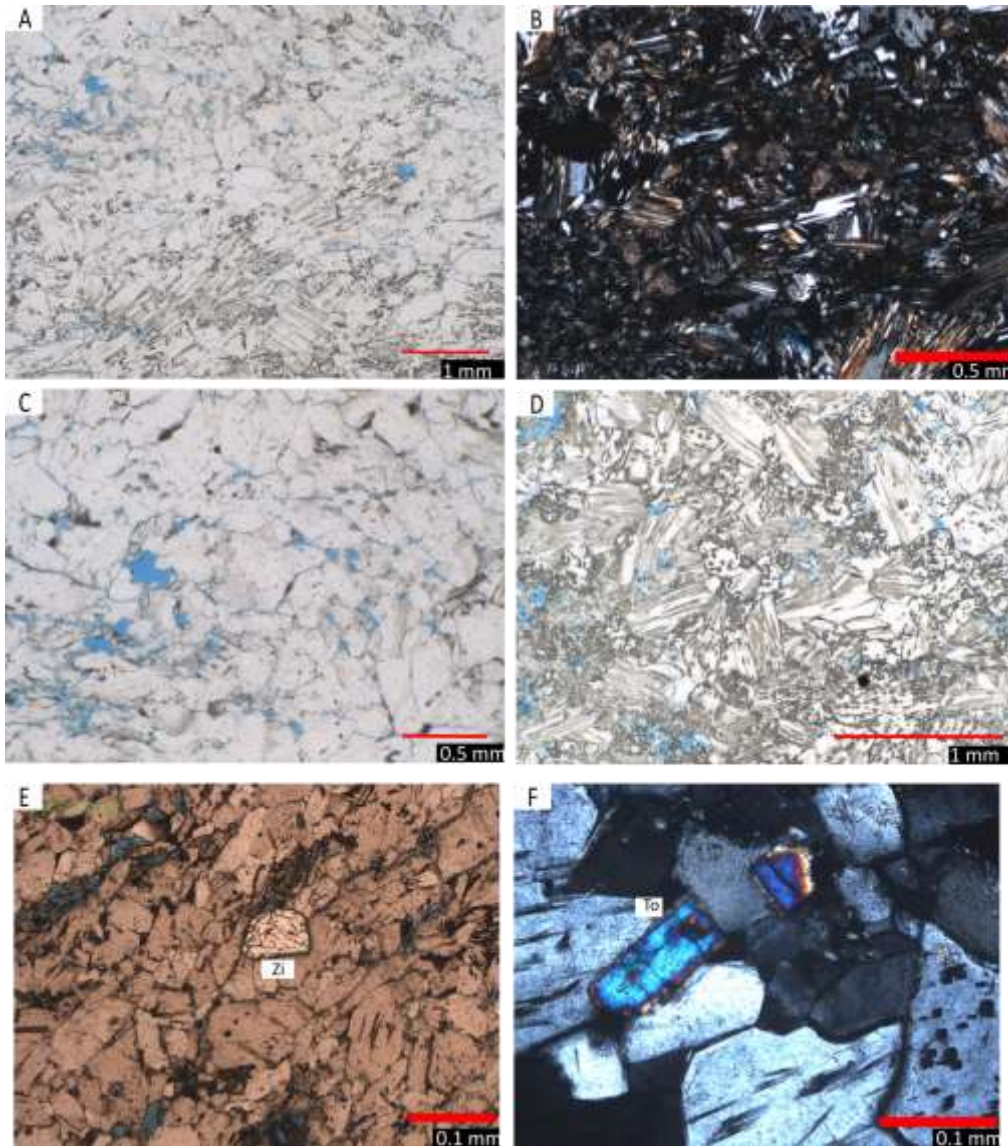


Figure 122 Observation au microscope optique de lame mince pétrographique du gypse saccharoïde à interlits. A : vue générale (x 50, LPNA). B : zones hétérogènes (x 50, LPNA), C : répartition de la porosité (x100, LPNA), D : zone avec des hétérogénéités de type mica et oxydes (x 100, LPNA). E : présence isolée d'un zircon (x100, LPA), F : tourmaline (x200, LPA)

**Le gypse « fer de lance »** est un faciès à macro cristaux centimétriques (Figure 123A). Les minéraux sont jointifs par face et imbriqués entre eux, ce qui permet de maintenir leur cohésion. Les cristaux de gypse présentent des clivages en V et parallèles aux surfaces des cristaux (Figure 123A et B). Ces clivages apparaissent plus rapprochés en bordure (50  $\mu\text{m}$ ) qu'au centre d'un même cristal (100  $\mu\text{m}$ ). Les plans de clivage en bordure présentent des signes d'altérations avec des incrustations brunâtres, identifiables comme des minéraux argileux (Figure 123B).

La porosité du gypse « fer de lance » est constitué exclusivement de vides intergranulaires et représente environ 6% de la lame étudiée. Cette estimation par analyse d'images reste complexe car la taille des minéraux est largement supérieure à la taille de la lame mince. Cela tend à sous-estimer le volume 3D de la porosité associé dans notre cas à une surface 2D. (L'observation d'un grand nombre de lames devrait être réalisée pour avoir une bonne représentativité). La porosité apparaît fortement hétérogène dans ses dimensions en fonction des écartements et des rétrécissements entre les macro cristaux maclés en « fer de lance ». Cette porosité est toujours de taille macroscopique. En bordure des cristaux maclés en « fer de lance », des amas de minéraux gypseux de forme lenticulaire et millimétrique sont visibles (Figure 123 C et D).

Dans les cristaux de gypse et le plus souvent à proximité des surfaces, des inclusions de calcite polarisant dans les teintes du 3<sup>ème</sup> ordre, d'une taille variant de quelques microns jusqu'à une trentaine de microns (Figure 123D) sont le témoin d'un phénomène de substitution ou d'inclusion au moment de la précipitation du gypse. Ces mêmes micro-grains de calcite ont été observés dans les zones altérées. Ce phénomène de précipitation est observé en conditions *in situ* dans des forages et a été modélisé géo chimiquement par Zaier (2021).

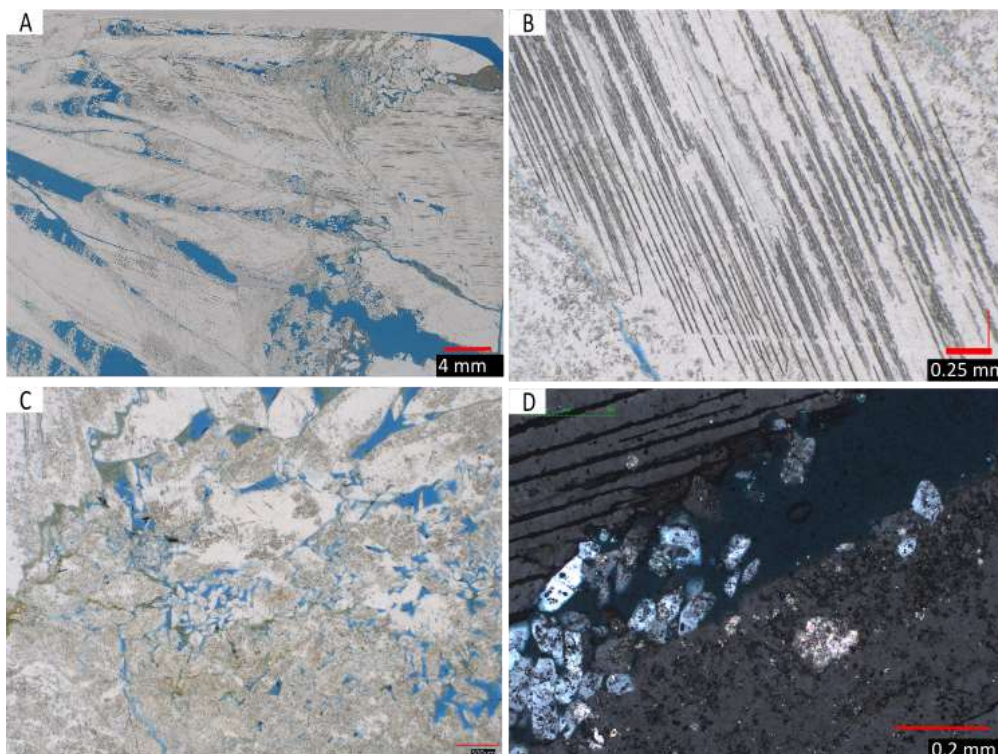


Figure 123 Observation au microscope optique de lame mince pétrographique réalisée sur un échantillon de gypse fer de lance (A à D) A : vue générale (x50, LPNA). B : altérations du gypse (x100, LPNA). C : grains de gypse entre les cristaux fer de lance (x50, LPNA). D : amas de gypse entre les macrocristaux fer de lance et grains de calcite dans un cristal fer de lance (x100, LPA).

### CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

**Le gypse albaströide** est un faciès massif à cristaux pluricentimétrique. Les cristaux ont des plans de clivage peu marqués pour ce faciès (Figure 124A). La lame pétrographique à partir de ce matériau prend ainsi l'aspect d'une grande plaque de gypse continue. La porosité est peu présente et se compose de fissures micrométriques peu connectées. L'analyse d'image appliquée sur la lame étudiée donne une porosité estimée à 3% de la surface de la lame (Figure 124B et C). Cette valeur surestime légèrement la porosité totale par rapport à la valeur mesurée par intrusion de mercure (soit 1,8%) ou par immersion dans l'eau (soit 0,6%). La mesure sur lame pétrographique en 2D ou sur de petit échantillon tend à surestimer la porosité compte tenu d'un effet d'échelle. Il faudrait pouvoir travailler avec les lames beaucoup plus grandes ou des éprouvettes à tester pluri décimétriques pour que les résultats soient représentatifs.

Le passage en LPA des lames de gypse albaströide révèle localement un grand nombre de minéraux allongés fortement altérés pris dans la masse de gypse et polarisant dans les teintes du 3<sup>ème</sup> ordre (Figure 124C et D). En LPNA, ces éléments se différencient difficilement du gypse car ils semblent avoir les mêmes propriétés. Il pourrait s'agir de minéraux accessoires, résidus de la masse de gypse primaire comme de la calcite ou de résidu d'anhydrite (qui ne s'est pas réhydraté sous forme gypseuse). Ces éléments restent très localisés et non pas distribués de manière homogène.

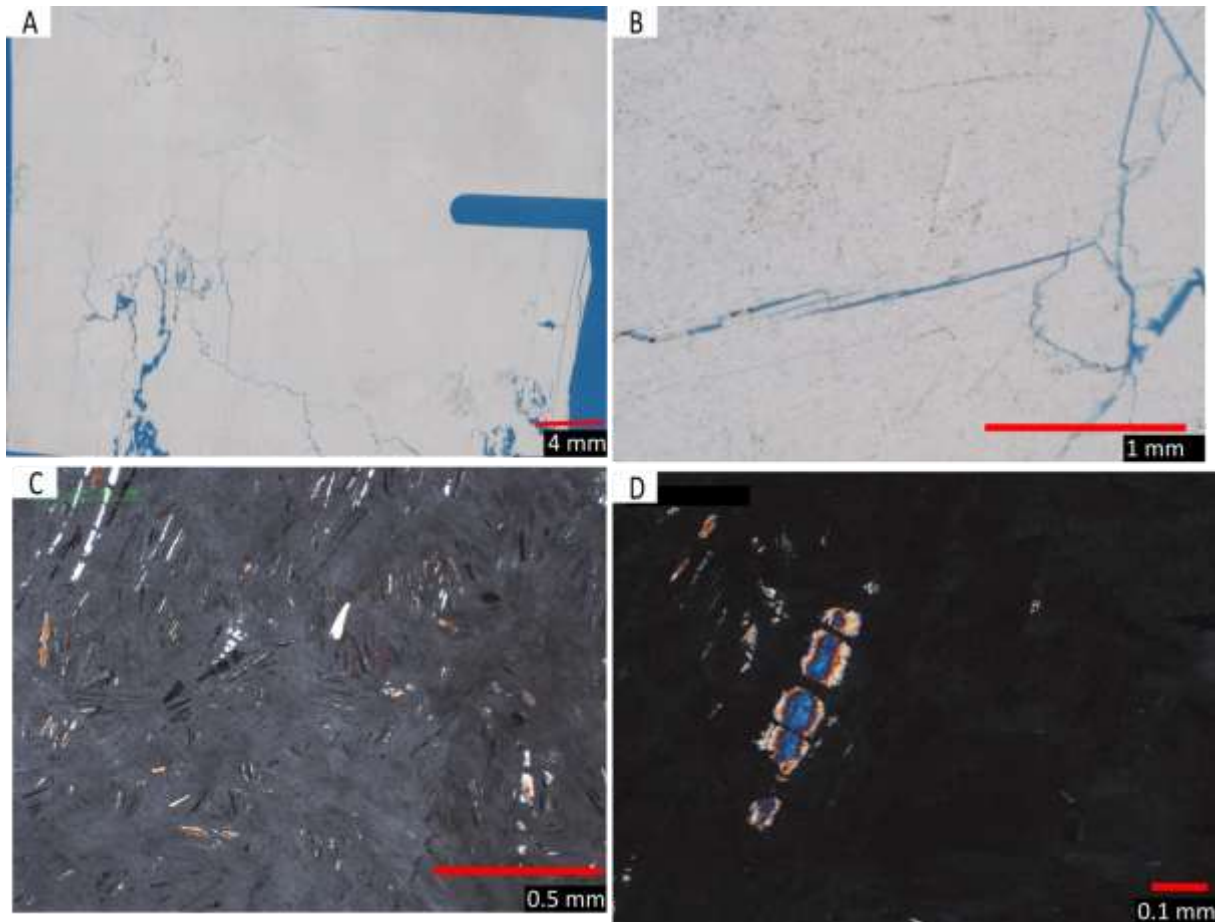


Figure 124 Observation au microscope optique de lame mince pétrographique réalisée sur un échantillon de gypse albaströide. A : vue générale du gypse albaströide (x 20). B : Porosité fissurale du gypse albaströide (x20), C : zone contenant des minéraux polarisant dans les teintes du 3<sup>ème</sup> ordre pris dans le gypse albaströide (x50, LPA). D : minéral inclus dans la masse de gypse (x100 LPA)

**Le gypse orogénique** est une masse compacte d'aspect sombre, presque noir au niveau macroscopique. Le passage en microscopie optique révèle une structure composée de 2 phases. Une première phase, majoritaire à l'échelle de la lame (environ 80% de la surface), se compose d'une masse grisâtre assez homogène (Figure 125.A). De nombreux éléments micrométriques de couleurs noirs sont présents et sont identifiés comme des argiles mêlés à des oxydes de fer. Cette phase ne présente pas de porosité et la délimitation des minéraux est difficile à cerner. Le passage en lumière polarisée analysée (LPA) permet de mieux délimiter les minéraux les composants (Figure 125B). Une partie de ces minéraux polarisent dans les teintes du 3<sup>ème</sup> ordre et peuvent être attribués à de la calcite (Figure 125.B). Les minéraux de cette phase sont xénomorphes avec des tailles de l'ordre de quelques dizaines de microns. De manière ponctuelle, des lits de cristaux subautomorphes allongés sont visibles. Ces lits présentent des éléments d'une centaine de microns environ avec une orientation longitudinale (Figure 125.C et D). La polarisation de ces minéraux dans le premier ordre indique qu'il s'agit de gypse. Il peut être supposé que la morphologie et l'orientation de ces minéraux de gypse peut favoriser ou non la formation de chemin préférentiel par rapport au sens d'écoulement. Des microclines identifiables à leurs macles sont également présents.

La seconde phase observée sur la lame de gypse orogénique est composée d'interlits sombres avec quelques millimètres d'épaisseurs. C'est dans ces zones que la porosité est observée. Les litages sont donc les voies privilégiées de pénétration de l'eau. L'estimation par traitement numérique de la lame mince permet une estimation de la porosité à 1,1%. Cette porosité est inférieure aux mesures de porosité à l'eau et au mercure (3,1 et 3,6 % respectivement) mais elle reste du même ordre de grandeur (Figure 125.E), ce qui s'explique par le calcul en 2D comparé à un volume en 3D mesuré en porosimétrie. La porosité apparaît bien connectée. Ces inters stratifications sont composés majoritairement d'argiles et d'oxydes. Elles comportent également une majorité de minéraux accessoires dont une partie a été détectée en DRX (Figure 125.F) notamment de la magnésite. Les micas et la célestine détectées par DRX n'ont cependant pas été observés sur la lame. Ces éléments xénomorphes sont globalement disséminés au sein de la matrice argileuse avec des tailles hétérogènes de l'ordre de quelques dizaines de microns.

*Synthèse : une grande majorité de la surface de la lame mince de gypse orogénique se compose de particules de gypse de faible dimension, sans structuration ni organisation. La dimension des cristaux et l'absence de leur délimitation nette sur les observations en LPNA est l'effet du compactage orogénique. Localement ce compactage semble peu efficace avec la présence de lits de gypse subautomorphes et dont la délimitation est nette. La matrice gypseuse est également entrecoupée d'interlits brunâtres riches en argiles et autres minéraux accessoires.*

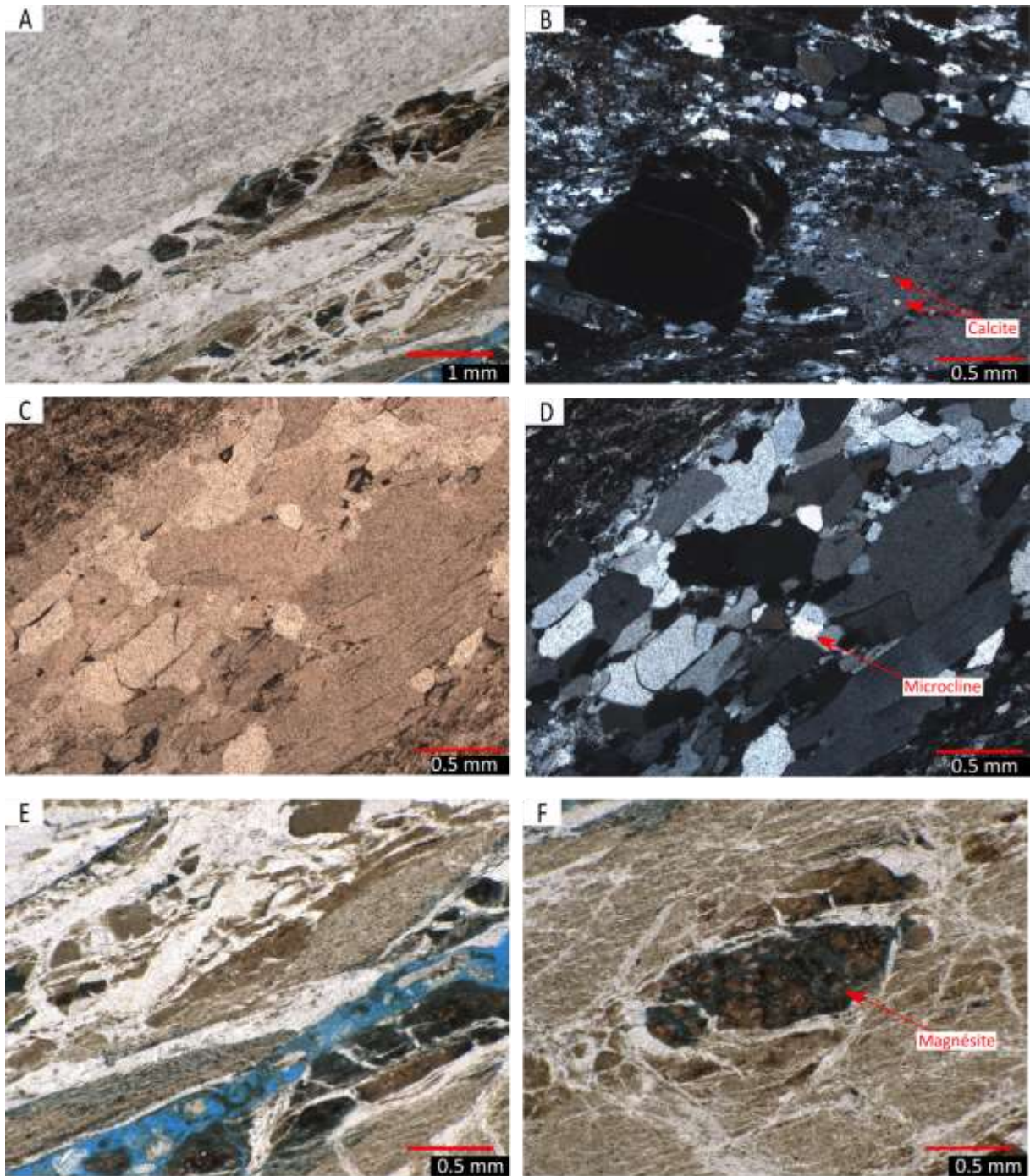


Figure 125 Observation au microscope optique d'une lame mince pétrographique réalisée sur du gypse orogénique. A : Visualisation de 2 textures différentes (x50, LPNA). B : bande claire composant la majorité de la lame mince en LPA et mise en évidence de la calcite (x40), C et D : mise en évidence des bandes subautomorphes de gypse en LPNA et LPA avec identification de microcline (x50), E : visualisation de la porosité (x 100, LPNA). F : visualisation des minéraux accessoires comme la magnésite dans les interlits (x100).

## 2) Mesure de la porosité à l'eau

La porosité totale à l'eau ( $N_t$ ) a été mesurée quantitativement par la méthode de la triple pesée après une saturation sous vide. Par un essai de saturation en conditions ambiantes, il est possible de distinguer la porosité accessible à l'eau ( $N_{48}$ ) et la porosité piégée ( $N_p$ ) (voir chapitre 2). Ces résultats sont synthétisés dans le Tableau 28 et la Figure 126.

Le **gypse matriciel** présente une porosité totale à l'eau ( $N_t$ ) de 9,7 %. Ce volume de pore est assez proche de celui mesuré dans les gypses saccharoïdes, soit 10,5 % pour le gypse saccharoïde pur et 8,0 % pour celui à interlits. Les écarts-types calculés sur les mesures sur ces échantillons mais aussi sur l'ensemble des mesures sur le panel de gypse étudié est inférieur à 3%, ce qui correspond à la variabilité interne des bancs dont sont issus les éprouvettes. La porosité accessible à l'eau en condition ambiante ( $N_{48}$ ) correspond à presque 100% de la porosité mesurée avec moins de 1% de porosité piégée et un écart type qui lui est supérieur. Cette absence de porosité piégée indique une porosité avec des diamètres de pores assez proches et sans grande rugosité. Ce faciès à texture « granulaire » possède donc une porosité développée et bien connectée.

Tableau 28 Caractérisation de la porosité des gypses étudiés. \* % de la porosité mercure.

	Gypse matriciel	Gypse saccharoïde pur	Gypse saccharoïde à interlits	Gypse albastroïde	Gypse fer de lance	Gypse orogénique
<b>Porosité totale (<math>N_t</math>) (%)</b>	9.7 +/-2,4	10.5 +/-2.8	8.0 +/-2.0	0.6 +/-0.3	11.2 +/-2,3	3.1 +/- 1.8
<b>Porosité ouverte (<math>N_{48}</math>) (%)</b>	9.3 +/-3.2	7.0 +/-2.6	5.7 +/-1.3	0.9 +/-0.5	2.8 +/- 0.6	9.7 +/-2.6
<b>Porosité piégée (<math>N_p</math>) (%)</b>	0.4 +/-0.9	3.5 +/-0.5	2.3 +/-0.8	0.1 +/-0.1	0.3 +/-0.1	1.4 +/-0.3
<b>Porosité mercure (<math>N_{hg}</math>) (%)</b>	9.4	12.4	11	1.8	4.5	3.6
<b>Macroporosité *%</b>	32.3	69	57.5	72.3	80.5	55.2
<b>Microporosité* %</b>	19.6	29.9	41.3	20.2	13.2	18.3
<b>nano porosité* %</b>	48.1	1.1	1.3	7.5	6,3	26.5
<b>Réseau de pore</b>	bimodal	unimodal	bimodal	//	bimodal	//
<b>Diamètre moyen (<math>\mu\text{m}</math>)</b>	0.1 et 0.7	10	10 et 150	//	30 et 280	//
<b>Diamètre d'accès (<math>\mu\text{m}</math>)</b>	0.03	4.2	3.1	2	8	0.2
<b>Coefficient de dispersion</b>	11.3	1.6	2.3	22.7	6.1	65.3

Les **gypses saccharoïdes** présentent quant à eux des porosités de même ordre de grandeurs avec des écarts types de compris entre 2 et 3%. Toutefois, la porosité accessible ( $N_{48}$ ) ne couvre pas l'ensemble du volume poral, mais environ 2/3 de la porosité ( $N_t$ ). Le tiers restant se définissant comme de la porosité piégée ( $N_p$ ). Le piégeage peut être causé par une mauvaise connectivité des pores et des variations de diamètre d'entrée entre capillaire et pore.



L'effet des interlits peut également être à prendre en compte dans le cas du gypse à interlits comme source d'approximations entre les éprouvettes.

**La quantification de la porosité de ces 3 premiers faciès met en évidence toute la complexité de la porosité du gypse non nulle, connectée et avec une structure variable. Le faciès matriciel peu présent dans la littérature (ou sous la dénomination de micro-saccharoïde à de rares occasions) mérite d'être distingué compte tenu de sa porosité ouverte.**

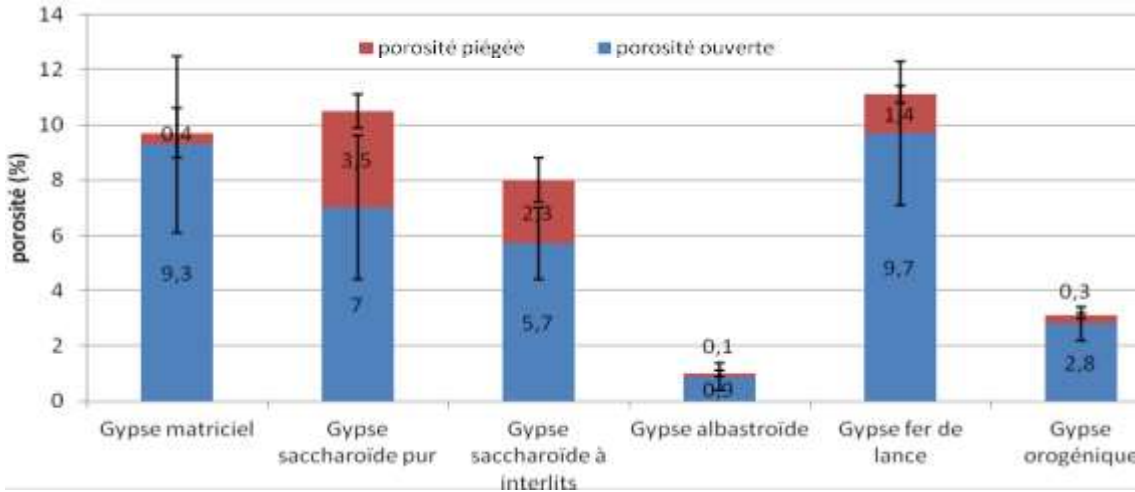


Figure 126 Quantification de la porosité totale et de sa distinction entre porosité accessible et piégée.

**Le gypse albaströïde** présente une très faible porosité ( $N_t$ ), inférieure à 1%. Cette porosité, totalement accessible lorsqu'elle est présente, est composée en réalité de fissures comme observées au microscope optique. La porosité piégée est peu développée avec une mesure présentant un écart type équivalent à celui de la porosité totale. En d'autres termes, la porosité piégée est possiblement quasi absente de ce faciès.

**Le gypse orogénique** montre quant à lui une porosité totale ( $N_t$ ) de 3,1%. Cette faible porosité est le résultat du contexte évolutif dans lequel se trouve le massif gypseux et de la compaction de la roche au cours de son histoire géologique. Cette porosité bien que faible est presque entièrement accessible avec 0,3% de porosité piégée ( $N_p$ ). La compaction semble bel et bien réduire la porosité tout en laissant accessible cependant un certain volume de vide qui pourrait correspondre en partie à de la fissuration, visible au microscope.

**Pour le gypse « fer de lance »**, la porosité totale ( $N_t$ ) obtenue est de 11,2%. Contenant 87% de porosité ouverte ( $N_{48}$ ) et 13% de porosité piégée ( $N_p$ ). Ce gypse est le plus poreux de la série étudiée. Les écarts types sur les mesures de porosité sont du même ordre de grandeur que pour les faciès précédents avec des valeurs inférieures à 3% pour  $N_t$  et  $N_{48}$  et moins de 1% pour  $N_p$ . Ces écarts restent acceptables et traduisent la variabilité interne des échantillons entre éprouvettes, notamment avec la présence de vides importants entre les cristaux massifs de gypse centimétrique alors que les éprouvettes ont un diamètre de 5 cm. La description macroscopique du gypse « Fer de lance » explique l'origine de la porosité piégée avec de fortes variations des dimensions de la structure porale notamment la présence de capillaires/fissures à forte vitesse d'ascension au contact des macrocristaux de gypse et le piégeage de l'air dans les macropores.

### 3) Mesure de la porosité par intrusion de mercure (PIM)

La porosimétrie par intrusion de mercure (PIM) permet par des incréments de mercure d'estimer la porosité et les rayons d'accès aux pores. Les résultats de ces mesures de caractérisation sont synthétisés dans le Tableau 28 et représentés dans la Figure 127. La comparaison des porosités quantifiées par PIM et des porosités à l'eau montre que les gypses matriciel et orogénique présentent des porosités similaires, respectivement de 9,4 et 9,7% pour le premier et de 3,6 et 3,1% le gypse orogénique. L'ensemble de la porosité est donc accessible à l'eau et au mercure pour ces deux échantillons.

Le gypse fer de lance a quant à lui une porosité accessible au mercure ( $N_{hg}$ ) plus faible par rapport à la porosité totale accessible à l'eau ( $N_t$ ), soit 4,5% contre 11,2%. La méthode PIM ne permet la détection que de la porosité inférieure à 400  $\mu\text{m}$ , aussi la porosité de grande taille entre les macrocristaux ne peut être quantifiée par PIM d'autant que l'échantillon analysé ne peut pas dépasser 1  $\text{cm}^3$  (volume du bulbe du pénétromètre).

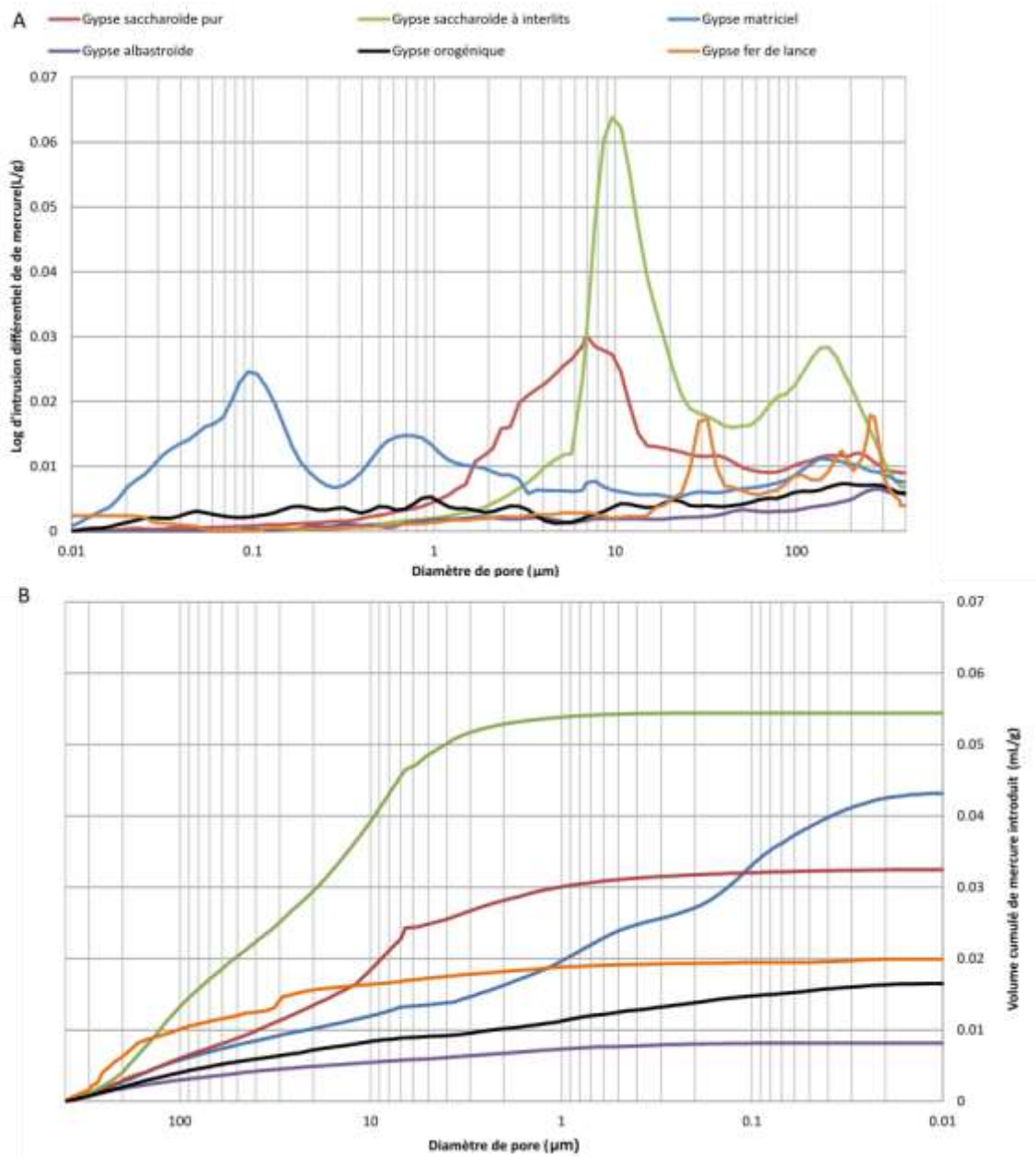


Figure 127 (a) courbe de distribution des rayons d'accès aux pores. (b) courbe cumulée d'intrusion de mercure.

Concernant les gypses saccharoïdes et albastroïdes, les valeurs obtenues par la méthode PIM sont supérieures à la porosité totale accessible à l'eau ( $N_t$ ). Elle est supérieure d'environ 2% pour les gypses saccharoïdes et de 1,2% pour l'albastroïde. Cela s'explique pour les faciès saccharoïdes par la rugosité de surface des pores dans ces échantillons à texture granulaire, cette rugosité pouvant être détectée par l'appareil comme de la porosité (Tomachot, 2002). Dans le cas du gypse albastroïde dont la porosité est principalement fissurale avec une absence de texture granulaire, l'explication peut venir de la représentativité de l'échantillon.

Concernant la description des familles de pores selon leur diamètre d'entrée, il est utilisé la classification comme suit dans le manuscrit de thèse : la nanoporosité a des diamètres inférieurs à 1  $\mu\text{m}$ , la macroporosité correspond aux pores supérieurs à 15  $\mu\text{m}$  de diamètre et la microporosité comme la porosité entre 1 et 15  $\mu\text{m}$ .

Pour le **gypse matriciel**, la porosité apparaît comme peu structurée avec un coefficient de dispersion ( $C_d$ ) de 11,3 alors que la quasi-absence de porosité piégée ( $N_p$ ) laisse supposer un coefficient de dispersion plus faible. Rappelons que le coefficient de dispersion ( $C_d$ ) permet d'apprécier numériquement l'étalement des tailles de pores et il se calcule à partir des pressions correspondant à 20, 50 et 80% du volume total de mercure injecté. Si le coefficient de dispersion est inférieur à 1, alors le réseau est unimodal. S'il est supérieur, alors le réseau est soit unimodal mais étalé, soit bimodal, soit hétérogène. Dans le cas du gypse matriciel, la porosité est de type bimodal avec deux familles de pores dont les diamètres moyens d'entrée sont égaux à 0,1 et 0,7  $\mu\text{m}$ . La porosité apparaît ainsi à dominance nanoporale (48% du volume). Bien que la porosité soit peu structurée (compte tenu de la faible hauteur des pics de la Figure 127A), la prédominance de ces faibles dimensions permet de limiter les effets liés au changement de vitesse lors d'une saturation par un fluide et donc de limiter les phénomènes de piégeages précédemment décrits. Cela permet d'expliquer l'absence de porosité piégée ( $N_p$ ) de ce faciès déterminé par la porosité à l'eau (voir point précédent). La macroporosité représente quant à elle le tiers des vides du gypse matriciel, sans qu'une réelle structuration ne soit visible (Figure 127A). La microporosité correspond à environ 20% du volume de mercure injecté sans réelle structuration également. Le gypse matriciel est donc un gypse nano poreux de structure bimodale avec également une fraction macroporale non structurée.

**Les gypses saccharoïdes** présentent plusieurs similitudes en plus de la surestimation de leurs porosités par la méthode PIM par rapport à la porosité à l'eau. Ils disposent d'une même famille de pore autour de 10-20  $\mu\text{m}$  (Figure 127A).

Le faciès à interlits présente une macroporosité plus structurée que le saccharoïde pur avec une seconde famille de pores de type macroporal autour de 150  $\mu\text{m}$ . Le coefficient de dispersion de 2,3 confirme cette structure bimodale. L'aspect bimodal du gypse à interlits avec sa macroporosité structurée est attribué à la présence des interlits où s'accumulent les éléments secondaires. Bien que moins structurée, la macroporosité occupe un volume plus important dans le gypse saccharoïde pur (69% du volume injecté contre 59%). Le gypse saccharoïde pur, quoique caractérisé par un coefficient de dispersion de 1,6, possède une structure unimodale avec une famille de micropores de diamètre 10  $\mu\text{m}$ , légèrement étalée. Dans les 2 cas, la nanoporosité est peu présente avec seulement 1% du volume de mercure injecté. La microporosité représente quant à elle 29,9% pour le gypse saccharoïde pur et 41,3% pour le saccharoïde à interlits. Les diamètres d'accès sont assez proches avec des diamètres de 3,1 et 4,2  $\mu\text{m}$ .

**Le gypse « fer de lance »** possède une porosité accessible au mercure presque exclusivement macroporale avec 80,5% du mercure injecté dans cette catégorie. Le reste de la porosité se répartit dans la microporosité avec 13 % de pores et la nanoporosité représente 6,3 %. Ce résultat est en accord avec la différence de mesure de porosité totale PIM et à l'eau (4.5%

versus 11.2%) et les observations réalisées au microscope optique mettant en avant une structure de pores de grandes dimensions. La porosité macroporale est représentée par plusieurs petits pics (de 30 à 280  $\mu\text{m}$ ). Son diamètre d'accès est de 8  $\mu\text{m}$ , soit la plus haute valeur obtenue dans notre panel, ce qui ferait de ce gypse le meilleur faciès pour réaliser une expérience de percolation. Malgré un coefficient de dispersion de 6,1, la structuration de la porosité apparaît bimodale dans la gamme de mesure de l'appareil, avec des pics plus marqués à 30 et 280  $\mu\text{m}$ .

**Le gypse albaströïde** révèle une porosité ( $N_{\text{hg}}$ ) supérieure à la porosité à l'eau sans structuration. En effet, aucune famille de pore ne ressort sur la Figure 127.a et le coefficient de dispersion est important (22,7). L'essentiel de la porosité est occupée par le mercure à partir d'un diamètre d'accès de 2  $\mu\text{m}$ . De même, la courbe cumulée ne permet pas d'obtenir de réelles informations. La porosité évaluée est essentiellement macroporale (ou fissurale) avec 72,3% du mercure injecté, 20,2% pour la microporosité et 7,5% pour la nanoporosité. Ce résultat est similaire aux observations de Bustamante et al., (2020) (Figure 128).

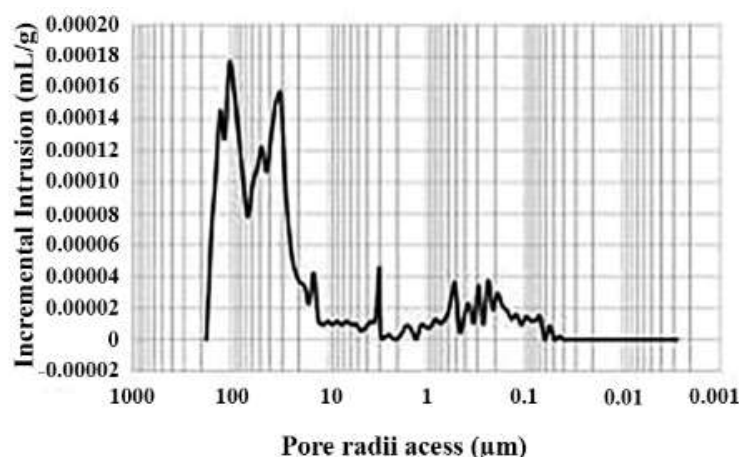


Figure 128 Distribution des rayons de pore pour un gypse de faciès albaströïde. (Bustamante et al., 2020)

**Le gypse orogénique** présente une distribution similaire à celle du gypse albaströïde sans réelle structuration (Figure 127.a). Son coefficient de dispersion reste le plus important avec une valeur de 65,3, signe de l'absence de structuration de la porosité. De même la courbe cumulée ne permet pas de distinguer de réelles informations sur la présence d'un rayon affectant l'accessibilité des pores. L'essentiel de la porosité est envahi par le mercure à partir d'un diamètre d'accès de 0,2  $\mu\text{m}$ . Ce faciès issu d'un compactage et de remaniements possède une porosité non structurée et faible en quantité malgré la présence de nombreuses phases secondaires non gypseuses.

#### 4) Mesure du coefficient d'imbibition capillaire ( $C_1$ )

La mesure du coefficient d'imbibition capillaire ( $C_1$ ) est un essai simple permettant de compléter de manière indirecte les informations obtenues via la porosimétrie à l'eau et la porosimétrie mercure. Ce coefficient obtenu à partir de la prise de masse par unité de surface et de temps renseigne sur la vitesse de saturation en eau, en lien avec la structure du réseau poral. Les résultats de ces essais sont synthétisés dans le Tableau 29 et la Figure 129. La dissolution du gypse va agrandir le diamètre des pores et ainsi augmenter la valeur de ce paramètre. De manière générale, les faciès de gypse retenus dans cette étude présentent des coefficients d'imbibition capillaire nuls à moyens. Le coefficient  $C_1$  le plus important correspond à celui du gypse saccharoïde à interlits avec une valeur de 50  $\text{g}\cdot\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$ . Cette valeur apparaît comme faible à moyenne en comparaison des valeurs trouvées pour d'autres roches sédimentaires qui peuvent atteindre voire dépasser les 100  $\text{g}\cdot\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$  (Figure 130).

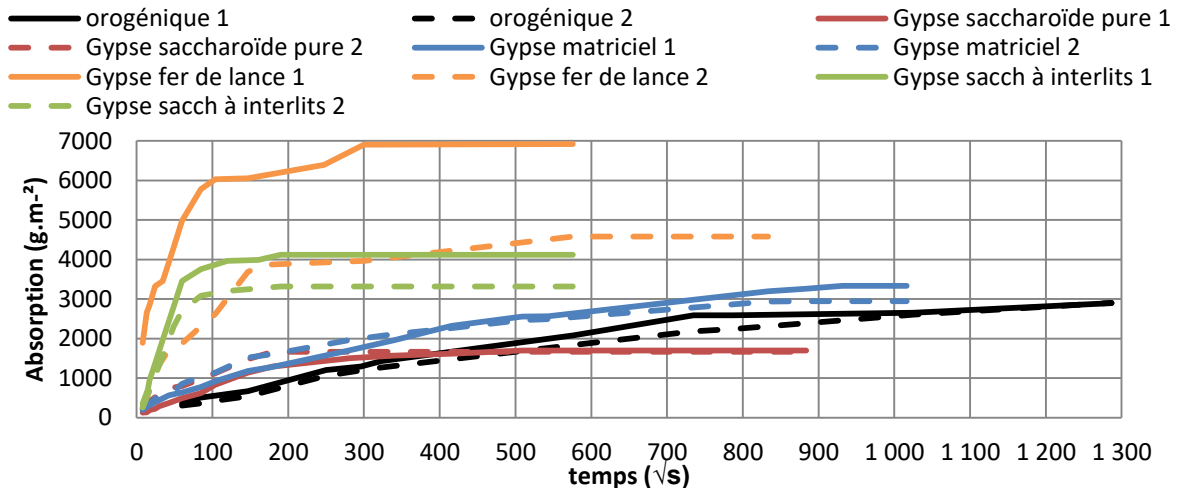
## CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

**Tableau 29 Détermination des coefficients d'imbibition capillaire des gypses étudiés**

	Gypse matriciel	Gypse saccharoïde pure	Gypse saccharoïde à interlits	Gypse albaströïde	Gypse fer de lance	Gypse orogénique
Capillarité $C_1$ ( $\text{g}\cdot\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$ )	21,1 +/- 6,1	9,4 +/- 4,4	49,9 +/- 9,2	0,2 +/- 0,2	48,1 +/- 38,9	2,5 +/- 1,1

**Le gypse matriciel**, présente un coefficient d'imbibition capillaire faible avec une valeur de  $21,1 \text{ g}\cdot\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$ . Ce résultat peut apparaître surprenant au vue de la structure nanoporale bien connectée avec une porosité entièrement accessible. Mais la porosité totale du matériau à 10% reste un volume faible ce qui limite la prise de masse au contact de l'eau. Le gypse matriciel décrit précédemment avec une porosité bimodale observée en PIM, aurait dû présenter une courbe d'imbibition avec une rupture de pente (voir chapitre 2). Ce comportement n'est pas observé. Les 2 familles de pores étant des nanopores avec des dimensions proches, la variation de vitesse de remontée capillaire peut être suffisamment minime pour ne pas apparaître sur la courbe.

**Le gypse saccharoïde pur** présente le plus faible coefficient de capillarité avec un  $C_1$  de  $9,4 \text{ g}\cdot\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$  malgré une porosité équivalente aux autres faciès autour de 10%. Cette faible porosité apparait comme moins structurée avec seulement 2/3 de la porosité accessible lors d'un essai de porosité à l'eau. Malgré un réseau unimodal avec des micropores autour de  $8,5 \mu\text{m}$ , l'essentiel de la porosité est macroporale (70% du volume) ce qui contribue à réduire la vitesse d'imbibition.



**Figure 129** Courbes d'imbibition capillaire des différents faciès de gypse étudiés. Plusieurs essais notés 1 et 2 montrent la variabilité des réponses des gypses et ont permis le calcul d'un écart type

**Le gypse fer de lance** présente un coefficient de capillarité calculé de  $48,1 \text{ g}\cdot\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$  avec un écart-type très important (variation du simple au double de la valeur). Ce gypse est une imbrication de cristaux de fer de lance pluri centimétrique, ce qui pour la taille d'éprouvette utilisée (50 mm), fait que le diamètre est insuffisant pour obtenir une bonne répétabilité des mesures. Ainsi la représentativité des cinétiques d'imbibitions ne peut être clairement établie. Certaines éprouvettes sans macropores ont une vitesse d'absorption rapide de presque  $100 \text{ g}\cdot\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$  et d'autres des vitesses bien inférieures soit  $10 \text{ g}\cdot\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$ . La courbe d'imbibition présente une rupture de pente bien marquée. Cette rupture est liée à la structure bimodale décrite en porosimétrie mercure avec deux familles de macropores (à  $30$  et  $280 \mu\text{m}$ ) correspondant à 80% du volume de pore total mesuré par PIM.

**Le gypse albaströïde** présente un coefficient de capillarité nul, ce qui est cohérent avec les résultats précédents. En effet, sa porosité est très faible (moins de 1%) et constituée de fissures. Ces fissures non connectées entre elles et peu développées ne permettent pas à l'eau de pénétrer en profondeur dans les éprouvettes, hors de la zone immergée.

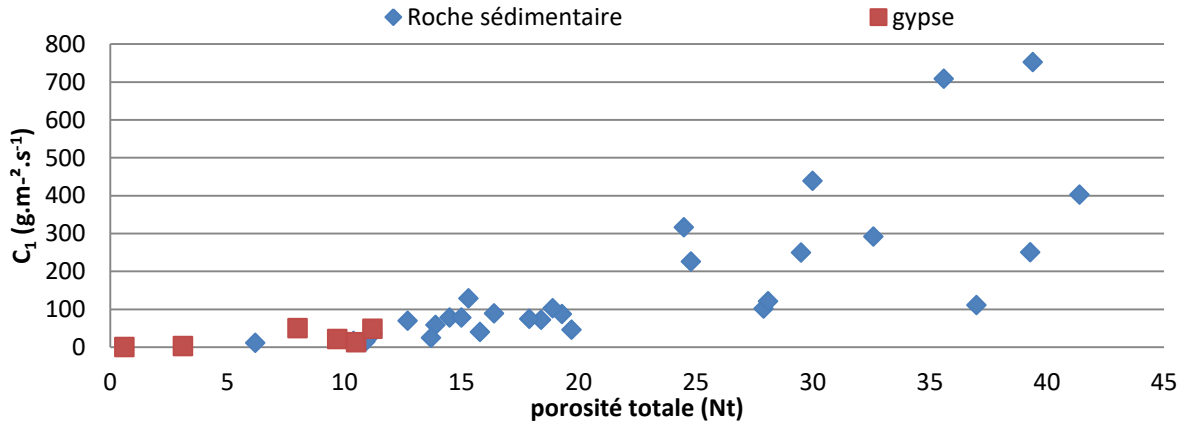


Figure 130 Représentation du coefficient d'imbibition capillaire (C<sub>1</sub>) en fonction de la porosité totale pour différentes roches sédimentaires. Modifié d'après (Bousquie, 1979).

**Le gypse saccharoïde à interlits** est le faciès présentant le plus fort coefficient parmi les gypses testés avec un C<sub>1</sub> de 49,9 +/- 9,2 g.m<sup>2</sup>.s<sup>-1</sup>. Sa porosité légèrement inférieure à celle du gypse saccharoïde pur (8% contre 10,5%) présente une structure différente de type bimodal avec des pores autour de 10 et 150 µm. La présence d'interlits avec une porosité plus importante (microscopie optique) et de plus grande dimension permet une meilleure ascension du fluide. Les interfaces entre le matériau gypseux et les interlits riches en minéraux secondaires peuvent favoriser l'ascension et également expliquer en partie ce résultat. La structure bimodale est observée sur l'éprouvette 1 de la Figure 129 (Courbe verte) avec une rupture de pente. Elle est également présente sur l'éprouvette 2 mais de manière moins nette.

**Le gypse orogénique** présente également un coefficient de capillarité très faible, voire nul. Sa porosité de 3,1% apparaît cependant comme bien connectée (N<sub>48</sub> = 2,8%) mais sans structuration particulière compte tenu de l'absence de familles de pores bien identifiées d'après les mesures PIM (Figure 127a). L'observation au microscope optique sur la (Figure 125) a révélé par ailleurs que la porosité se concentre au niveau des fissures dans les interlits remplis de minéraux secondaires. Ainsi la porosité n'est pas distribuée de manière homogène ce qui ne favorise pas l'ascension de l'eau lors de l'essai de capillarité. Cet effet est visualisable macroscopiquement avec une ascension de l'eau exclusivement dans ces fissures (Figure 131).



Figure 131 Exemple du changement de coloration avec la saturation d'une éprouvette de gypse orogénique.

**Synthèse :** la caractérisation des faciès gypseux a permis de montrer que le gypse est une roche de porosité faible (1 à 12 %). Cette porosité est susceptible d'être suffisamment structurée pour permettre l'établissement d'un écoulement.

- Le **gypse matriciel** présente une porosité d'environ 10% bien structurée et connectée. Cette porosité est développée au sein d'une matrice lui conférant une structure nanoporale (presque 50% du volume de mercure injecté). Cette porosité est de type bimodal autour de 2 familles de pores à 0,1 et 0,7  $\mu\text{m}$ . Ces faibles dimensions et le volume de pore permettent une saturation complète des éprouvettes mais avec une cinétique lente de remontée capillaire ( $C_1$  de 21,1  $\text{g.m}^2.\text{s}^{-1}$ ).
- Le **gypse saccharoïde pur** a une porosité d'environ 10,5%. Cette porosité intergranulaire apparaît comme homogène à l'échelle d'une lame pétrographique et bien structurée. Malgré cette structuration, la porosité apparaît comme accessible à l'eau ( $N_{48}$ ) pour seulement les 2/3 de son volume. Cela peut s'expliquer par la structure principalement macroscopique (70% de la porosité accessible au mercure) avec un réseau unimodal. Le diamètre d'entrée est de 20  $\mu\text{m}$ , ce qui favorise le phénomène de piégeage de l'air. Cette porosité faible avec une structure macroporale favorise une cinétique d'imbibition capillaire très lente ( $C_1=9,4 \text{ g.m}^2.\text{s}^{-1}$ ).
- Le **gypse saccharoïde à interlits** présente une porosité légèrement plus faible que le faciès pur (8% contre 10,5%). La répartition entre porosité accessible ( $N_{48}$ ) et porosité piégée ( $N_p$ ) est de même rapport avec 2/3 de la porosité accessible. Cela est dû à la répartition entre macro et microporosité assez proche également (57,5 % de macroporosité et 41,3% de microporosité). Cette dernière révèle une structure bimodale avec des micropores autour de 10  $\mu\text{m}$  comme pour le faciès saccharoïde pur. La macroporosité est quant à elle structurée autour d'un pic vers 150  $\mu\text{m}$ , en lien avec les interlits argilo-ferrugineux, principale différence entre les 2 faciès saccharoïdes. Cette macroporosité entraîne une vitesse d'imbibition supérieure ( $C_1=49,9 \text{ g.m}^2.\text{s}^{-1}$ ).
- Le **gypse fer de lance** a une porosité ( $N_t$ ) de 11,2% qui est presque entièrement accessible à l'eau ( $N_{48} = 9,7\%$ ). Ce faciès qui est un enchevêtrement de cristaux en forme de « fer de lance » pluri centimétriques montre une forte variabilité au niveau des mesures entre échantillons du lot testé. Une partie de sa porosité est constituée de vides centimétriques qui vont fortement influencer la cinétique d'imbibition allant de 9,9 à 100  $\text{g.m}^2.\text{s}^{-1}$ . Ces macros vides ne sont pas détectées en PIM ( $> 400 \mu\text{m}$ ). La porosité mesurée par cette méthode est ainsi sous-estimée (4,5% par rapport à la porosité à l'eau ( $N_t$ )). Elle permet néanmoins de mettre en évidence des macropores (représentant 80% du volume injecté) et une structure bimodale avec des familles de pores à 30 et 280  $\mu\text{m}$ .
- Les **gypses albastroïde et orogénique** apparaissent comme peu poreux (moins de 5%). Cette porosité se manifeste essentiellement par des fissures pour la forme albastroïde et se localise dans des interstratifications argileuses pour le gypse orogénique. La porosité de ces échantillons est sans structuration comme le révèle les forts coefficients de dispersion de 22,7 et 65,3 des mesures PIM. Ainsi, seule une circulation lente de l'eau est permise lors de la saturation. L'eau ne peut pénétrer et diffuser qu'à partir de capillaire peu nombreux qui crée une porosité non homogène sur les éprouvettes.

Ainsi la prise en compte de la porosité dans le gypse qui est peu décrite dans la littérature, apparaît comme nécessaire dans l'étude du comportement des roches gypseuses. Le gypse est en effet une roche poreuse. La porosité en termes de pores mais aussi de fissures peut conduire à une dissolution interne de la masse gypseuse et pas seulement de la surface du gypse. Une classification des gypses granulaires apparaît également comme judicieuse compte tenu de leur variabilité. Le gypse est en effet souvent désigné par la morphologie de ses cristaux (« fer de lance »...) mais la forme saccharoïde d'aspect granulaire peut présenter également des variations de texture un gypse micro granulaire.

### III. Propriétés mécaniques des faciès gypseux étudiés

#### 1) *Essai de compression*

Afin de déterminer la résistance des faciès de gypse étudiés, il est réalisé une série d'essais de résistance en compression. Les éprouvettes de gypses matriciels et saccharoïdes testées proviennent chacune de deux blocs, ce qui peut contribuer à la variabilité de ces faciès (les éprouvettes testées ont une porosité  $N_t$  équivalente). Les résultats sont synthétisés dans le Tableau 30. Les contraintes de rupture des différents faciès sont comprises entre 4,3 et 18,2 MPa. Ces valeurs sont cohérentes avec la littérature (chapitre 1. partie C) où les résistances en compression du gypse en contexte tabulaire (ou sédimentaire) sont comprises entre 7 et 25 MPa. Elles peuvent atteindre les 50 MPa en contexte orogénique. Les gypses étudiés sont donc dans la moyenne inférieure des résistances mécaniques du gypse d'après la littérature.

Tableau 30 Résultats des essais de compressions. \*  $E_{stat}$  : module élastique statique

	Contrainte (MPa)	$E_{stat}$ (GPa)	Force de rupture (kN)
Gypse matriciel	7,9 +/-5,1	7,0+/-2,7	15,6+/-9,9
Gypse saccharoïde pur	9,9 +/-2,6	8,2+/-3,9	19,2+/-5,0
Gypse saccharoïde à interlits	4,3+/- 1,0	3,4+/-2,4	8,4+/-1,9
Gypse orogénique	14,7+/-1,3	15,1+/-0,8	28,7+/-2,5
Gypse albastroïde	18,2+/-5,6	13,6+/-2,0	40,0+/-8,1
Gypse fer de lance	5,9+/-2,7	8,8+/-2,4	11,6+/-5,4

Les faciès les moins résistants sont le gypse saccharoïde à interlits, de part ses inter stratifications qui constituent des zones de faiblesse et le gypse fer de lance. Pour celui-ci, la rupture provient par une décohésion des cristaux de fer de lance qui engendre un glissement et donc la rupture. Les gypses saccharoïdes purs et matriciels présentent des contraintes respectivement de 9,9 et 7,9 MPa soient des valeurs de même ordre de grandeur, et sont d'un ordre moyen par rapport au panel étudié. Les faciès orogéniques et albastroïdes ont une résistance mécanique de l'ordre de 14 MPa, la fissuration peut jouer un rôle pour le gypse albastroïde en réduisant sa résistance. Le gypse orogénique a été décrit comme présentant des hétérogénéités (plissement), ce qui a conduit à des ruptures suivant ces orientations.

Les modules élastiques sont déterminés à partir des courbes de contraintes-déformations comme présentés dans le chapitre 2. Les valeurs obtenues sont comprises entre 3,4 et 15 GPa. Le plus faible module élastique est celui du gypse saccharoïde à interlits toujours du fait de ces interlits qui constituent des plans de faiblesse important. Les gypses matriciels, saccharoïdes purs et fer de lance sont quant à eux de l'ordre de 7 à 8 GPa contre 13,6 et 15 GPa pour les faciès massifs que sont les gypses orogéniques et albastroïdes.

#### 2) *Investigation non destructive du module d'élasticité*

Afin de pouvoir effectuer un suivi de l'évolution du module d'élasticité lors des essais de percolation, il est fait le choix de le calculer à partir de deux méthodes d'investigations non destructives. Il s'agit de la vitesse de propagation des ondes ( $E_{dyn}$ ) et de la fréquence de résonance ( $E_{mod}$ ). Les protocoles de ces essais sont décrits dans le chapitre 2. Il est rappelé les équations de calcul du module élastique pour ces deux méthodes (éq 3.A.1 et 3.A.2).

$$E_{dyn} = \frac{V_p^2 * \rho * (1+\nu)(1-2\nu)}{(1-\nu)} \quad (\text{éq3.A.1})$$

$$E_{mod} = 4.10^{-6} * L^2 * F^2 * \rho \quad (\text{éq3.A.2})$$

Avec  $V_p$  : la vitesse de propagation des ondes P,  $\nu$  le coefficient de Poisson,  $\rho$  : masse volumique de l'échantillon,  $L$  : longueur de l'échantillon,  $F$  : fréquence de résonance.



## CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

Les masses volumiques utilisées dans les calculs sont obtenues en même temps que la porosité à l'eau (méthode de la triple pesée). La densité a été confirmée par des mesures au pycnomètre à hélium donnant des résultats similaires pour l'ensemble du panel de gypses testés. La masse volumique est d'environ 2300 pour l'ensemble des éprouvettes avec des écarts-types inférieurs à 35 kg/m<sup>3</sup>, ce qui est cohérent avec la littérature (voir chapitre 1). Le coefficient de Poisson retenu est fixé à 0,28 d'après Auvray (2003) pour l'ensemble des faciès.

### a) **Détermination des modules d'élasticité dynamique ( $E_{dyn}$ ) et modale ( $E_{mod}$ )**

La mesure de la vitesse du son est une méthode qui repose sur la mesure du temps de parcours d'une onde ultrasonore entre un émetteur et un récepteur positionnés à une distance connue qui permet de calculer une vitesse de propagation. Il est utilisé dans ce travail la propagation des ondes P ou vitesse du son ( $V_p$ ) et d'en déduire un module d'élasticité dynamique ( $E_{dyn}$ ). La fréquence de résonance repose également sur le principe de propagation d'une onde mécanique et conduit à déterminer également un module d'élasticité ( $E_{mod}$ ). L'utilisation de cette seconde méthode a été motivée par sa plus forte sensibilité pour détecter l'évolution des propriétés des matériaux soumis à une altération telle que la dissolution lors des essais de percolation. Cette meilleure sensibilité a été observée par Saad (2011) lors de l'étude de l'altération de carbonates soumis à des cycles de gel-dégel. Il est également possible de déterminer à partir de la vitesse du son, un indice de continuité (IC) comme décrits au chapitre 2. Cet indice peut être relié à la porosité totale ( $N_t$ ) et par une détermination graphique permet d'estimer la part de porosité associée à de la fissuration ( $N_{fiss}$ ) et aux pores ( $N_{pore}$ ).

Les résultats des investigations de ces 2 méthodes sont regroupés dans le Tableau 31 et Figure 132. Les gypses de contexte sédimentaire (c'est-à-dire tous sauf le faciès orogénique) montrent globalement des valeurs de vitesse d'onde plus faibles que celles mesurées dans le gypse orogénique, exception faite du gypse massif albaströïde qui a subi une phase d'anhydritisation-hydratation, le transformant en une masse compacte non poreuse. Ces résultats sont en accord avec la littérature et notamment les résultats d'Auvray (2003) sur les gypses parisiens. En contexte purement sédimentaire, les valeurs obtenues sont comprises entre 2500 et 4000 m/s.

**Tableau 31 Détermination de la vitesse de propagation des ondes P et des paramètres mécaniques associés.**

	<b>Gypse matriciel</b>	<b>Gypse saccharoïde pur</b>	<b>Gypse saccharoïde à interlits</b>	<b>Gypse albaströïde</b>	<b>Gypse fer de lance</b>	<b>Gypse orogénique</b>
Masse volumique $\rho$ (kg/m <sup>3</sup> )	2333 +/-27	2280+/-35	2322+/-32	2308+/-22	2281+/-22	2320+/-8.8
$V_p$ (m/s)	3706 +/-562	3390+/-378	2590+/-275	4402+/-716	3028+/-473	4062 +/-274
$E_{dyn}$ (GPa)	22,7+/-5.0	20,5+/-3.0	15,9+/-3.0	36,1+/-1.2	16,8+/-4.8	29.9 +/- 5.5
Ic (%)	71+/-6.0	66+/-10	50+/-5.3	84+/-14	58+/-9.1	74 +/-0.1
Fréquence de résonance (kHz)	21,4 +/- 1,5	21,7 +/- 2,0	7,7 +/- 1,1	16,5 +/- 1,3	16,8+/- 1,7	16,4 +/- 2,8
$E_{mod}$ (GPa)	24,4 +/- 3,1	24,1 +/- 4,6	13,1 +/- 3,7	18,7 +/- 6,4	24,7 +/- 5,1	29,0 +/- 4,1

**Le gypse saccharoïde pur** présente une vitesse du son ( $V_p$ ) de 3390 m/s, avec un écarts-type de 378 m.sec<sup>-1</sup>. Cette variabilité est justifiée par celle de la porosité ( $N_t$ ) d'une éprouvette à l'autre. La fréquence de résonance est de 21,7 kHz, soit le même ordre de grandeur que le gypse matriciel avec un coefficient de variation de 9%. Les modules élastiques sont comme pour le faciès précédent de l'ordre de 20 GPa ( $E_{dyn}$ = 20,5 et  $E_{mod}$ = 24,1).

**Le gypse matriciel** présente une vitesse de propagation des ondes P de 3076 m/s avec un écart-type relativement important (562 m/s, soit un coefficient de variation de 15%). Ce coefficient de variation relativement fort est lié à la variation de la matrice comme décrit lors des observations par microscopie optique. La variation de porosité entre les éprouvettes testées (soit de 2%) contribue également à expliquer l'écart de vitesse d'onde mesurée. La fréquence de résonance moyenne de 21,4 kHz avec un écart type de 1,5 kHz, soit un coefficient de variation de 7%. Les modules d'élasticités calculés sont équivalents avec 22,7 GPa pour  $E_{dyn}$  et 24,4 GPa pour  $E_{mod}$ , avec des coefficients de variations de 22 et 12%.

**Le gypse fer de lance** avec  $V_p = 3028$  m/s, présentent quant à lui une variabilité (coefficient de variation de 15%) en lien avec la porosité de ces macro-cristaux imposant au regard de la taille des éprouvettes testées. De plus cette porosité est macroscopique et réduit la vitesse de propagation malgré l'aspect cristallin de ce faciès. La mesure de la fréquence pour le faciès gypse fer de lance donne un résultat de 14,3 kHz (+/- 1 kHz) et un module élastique de 16,7 GPa (+/- 5,1). Ce module élastique et son écart-type sont identiques aux résultats obtenus en vitesse du son.

**Le gypse saccharoïde à interlits** présente la plus faible valeur de vitesse du son avec 2590 m/s malgré une porosité équivalente à celle du gypse matriciel et du gypse saccharoïde pur. Cet écart avec le gypse saccharoïde pur de presque 800 m/s, est attribué à la présence des interlits qui freinent la propagation des ondes. Le module élastique ( $E_{dyn}$ ) est donc le plus faible du pénale étudié (15,9 GPa), et un coefficient de variation de 20%. De même la fréquence de résonance de ce faciès est la plus faible avec 7,7 kHz et un module  $E_{dyn}$  de soit 13,1 GPa, ce qui est proche du module obtenu par la vitesse du son (soit 15,9 GPa). Ce module élastique est toutefois hétérogène avec un coefficient de variation de 28%. Ces fortes différences sont liées aux interlits.

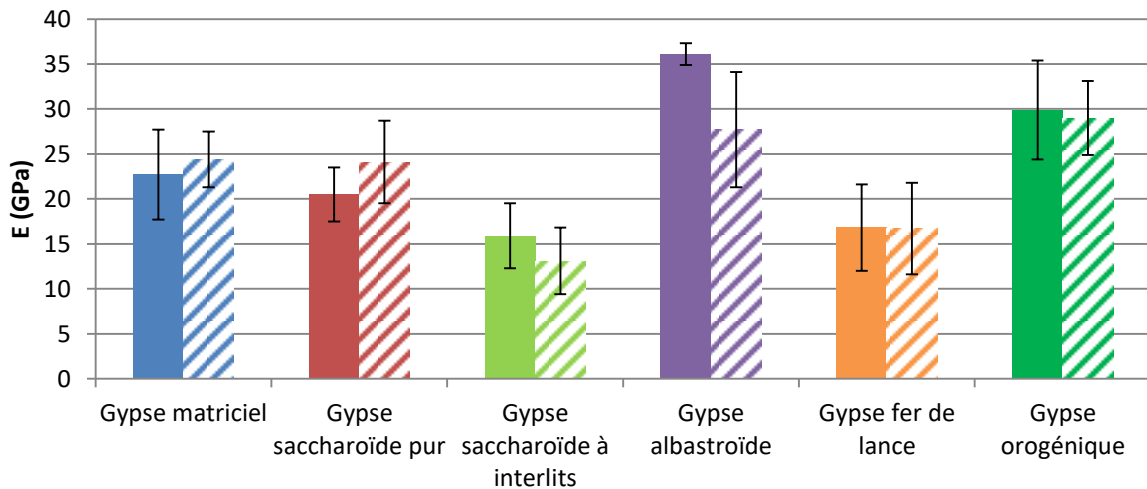


Figure 132 Module d'élasticité dynamique calculé pour les faciès de gypse étudiés

**Le gypse albaströïde** non poreux à l'exception de quelques fissures de faibles dimensions présentent la valeur la plus forte de vitesse d'onde avec 4402 m/s l'un écart-type le plus important en raison de la densité de fissures qui varie entre les éprouvettes testées et qui affecte de manière importante la vitesse de propagation des ondes allant de 2361m/s au minimum et 5200 m/s au maximum). La fréquence de résonance de ce faciès est de 16,4 kHz (+/-2,8). L'écart type sans être faibles reste cohérent avec la présence d'hétérogénéités au niveau de la porosité comme déjà décrit. Les modules d'élasticités apparaissent comme les plus élevés du panel étudiés pour la vitesse du son (36,1GPa +/- 1,2) et de 27,7 +/- 6 GPa par la fréquence de résonance.

**Le gypse orogénique** (peu poreux) possède quant à lui une vitesse de propagation d'onde importante avec 4062 m/s et un écart-type relativement faible de 274 m/s, soit 6% de coefficient d'écart type. Ce faciès hétérogène présente des plissements mais bien insérés dans la masse. Ce compactage limite la porosité et permet une meilleure propagation des ondes P. Les fréquences de résonances obtenues sont valent 17,8 kHz (+/- 1,3) et permettent d'estimer un module élastique ( $E_{mod}$ ) de 29,0 GPa avec un coefficient de variation de 14%. Ce qui est similaire au module  $E_{dyn}$  déterminé par la vitesse du son qui est de 29,9 GPa +/- 5,5.

Les deux méthodes utilisées présentent des modules élastiques de même ordre de grandeur entre elles (Figure 133), malgré un  $R^2$  de seulement 0,6. L'équation de la pente indique que les résultats obtenus en vitesse du son sont légèrement supérieurs à ceux obtenus par la mesure de la fréquence de résonance (pente <1). Cette surestimation pourrait provenir de la plus forte sensibilité décrite par Saad (2011) de la fréquence de résonance vis-à-vis de la fissuration et des hétérogénéités intra éprouvettes. Malgré des fréquences de résonance inférieures à celles mesurées sur les gypses matriciel et saccharoïde pur, leurs modules élastiques des gypses albastroïdes et orogéniques sont nettement supérieurs.

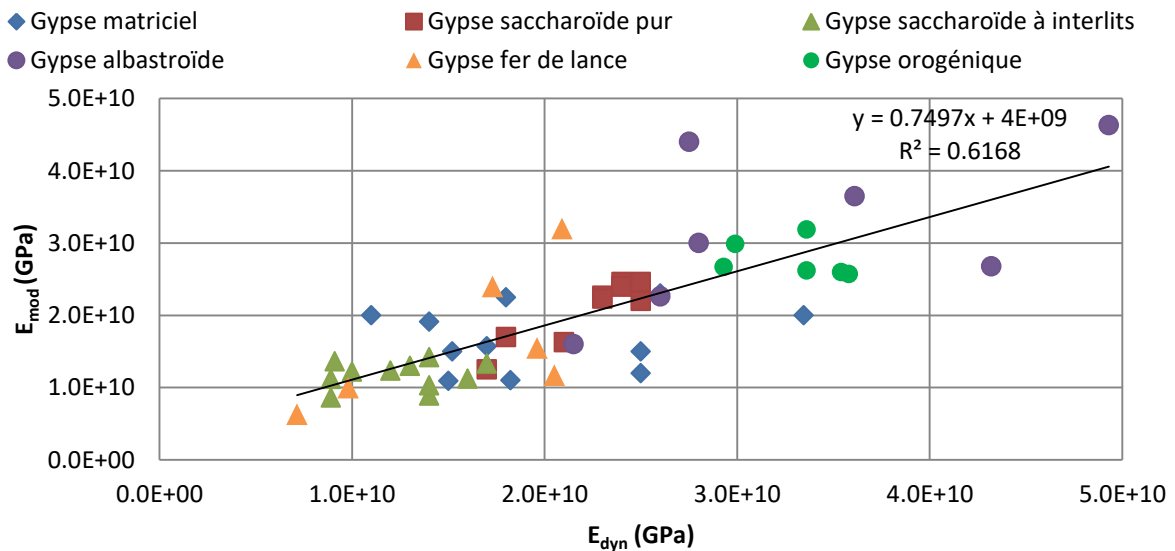


Figure 133 Comparaison des modules élastiques obtenus par la mesure de la vitesse du son ( $V_p$ ) et de la fréquence de résonance ( $F$ ).

**b) Relation entre module élastique et porosité**

La relation entre la porosité et le module élastique ( $E_{dyn}$ ) est représentée dans la Figure 134. Il est obtenu une corrélation satisfaisante entre la porosité et le module élastique calculés à partir de la vitesse du son. Le gypse saccharoïde à interlits fait figure d'exception à cette règle compte tenu de ces interlits. Ces hétérogénéités freinent la propagation de l'onde et réduisent ainsi le module calculé. Cet effet est aussi observable en compression car ils constituent des points de faiblesses. La relation entre porosité et module élastique du matériau est donc confortés par si il est homogène et à un niveau de pureté important.

La vitesse du son ( $V_p$ ) permet également de calculer un indice de continuité ( $I_c$ ) par rapport à une vitesse du son théorique ( $V_t$ ) d'un cristal pur et sans imperfection de gypse soit 5200 +/- 300 m/s (Auvray, 2003). Cet indice de continuité ( $I_c = (V_p/V_t) \times 100$ ) donne une indication du taux de fissuration de la roche. Cet indice de continuité mis en relation avec la porosité totale ( $N_t$ ) permet par une détermination graphique de la part de porosité due aux fissures ( $N_{fiss}$ ) et la porosité due aux pores ( $N_{pore}$ ) (Figure 135).

### CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

Deux tendances apparaissent avec :

- **les gypses orogéniques et albaströïdes** dont la porosité est exclusivement fissurale ( $N_{fiss}$ ). Cette estimation est concordante avec les observations en microscopie avec des porosités fissurales et dans le cas du gypse orogénique partiellement comblées
- **les gypses matriciels, saccharoïdes purs et « fer de lance »**. Ces trois faciès ont a contrario une porosité essentiellement constituée de pores ( $N_{pore}$ ) avec moins de 1 % de porosité fissurale.

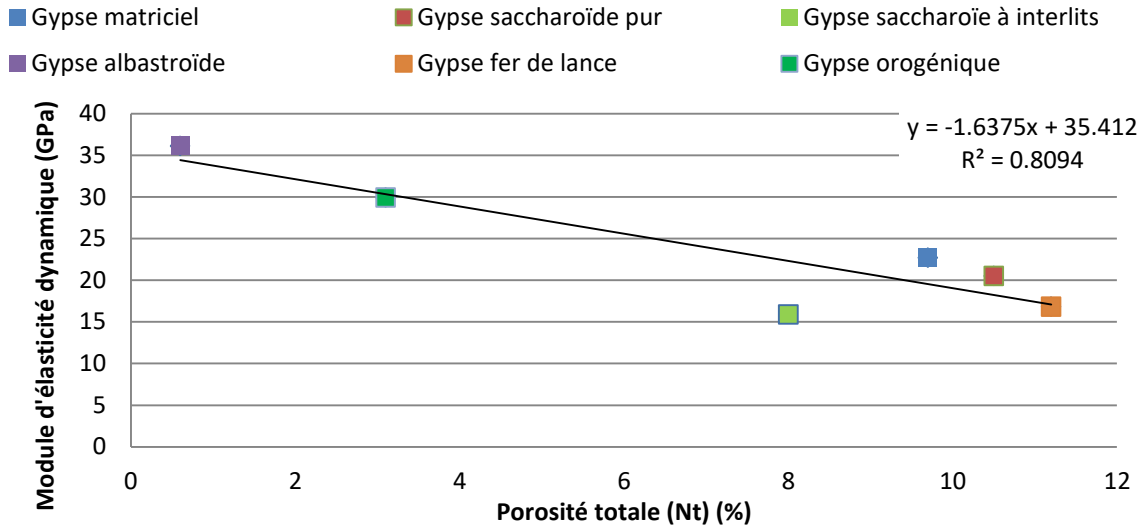


Figure 134 Relation entre la porosité totale (Nt) et le module élastique

Le gypse saccharoïde à interlits occupe une position intermédiaire avec 1,8% de porosité fissurale et 6,2 % de pore ( $N_{pore}$ ). Ces fissures ne sont pas observées au microscope optique et peuvent être attribuées aux interlits qui, d'un point de vue mécanique, ont les mêmes effets qu'une fissure.

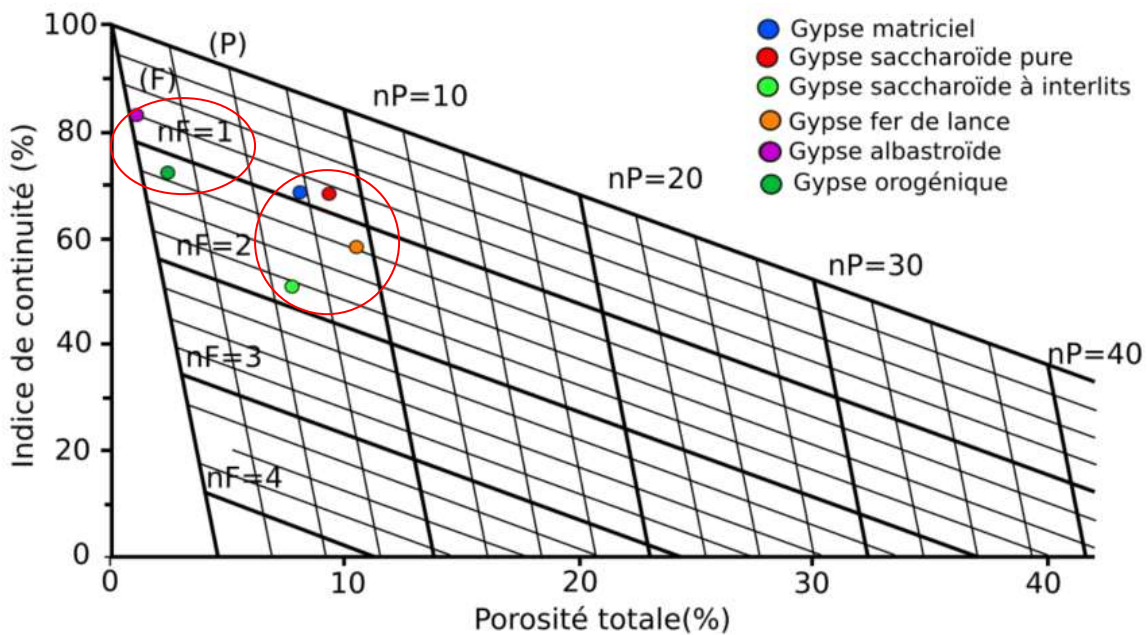


Figure 135 Estimation de la porosité porale ( $N_{pore}$ ) et fissurale ( $N_{fiss}$ ) à partir de la porosité et de l'indice de continuité

*Synthèse : le faciès du gypse associé à une porosité donnée, a un impact important sur les propriétés de résistance mécanique, que ce soit la porosité de type fissurale ou porale. Comme pour d'autres roches sédimentaires, le volume de pore contrôle le module élastique du matériau (une augmentation du volume de vide diminue le module). Les gypses albastroïdes et orogéniques se trouvent ainsi être des faciès à faible porosité principalement fissurale et avec les modules élastiques les plus importants (supérieur à 30 GPa en dynamique et 13,6 GPa en compression) qui sont associés par extension à une meilleure résistance mécanique. Les gypses matriciels et saccharoïdes pur avec des porosités de 10% et peu de fissures, présentent des modules élastiques d'environ 20 GPa en non destructifs et 8 GPa en statique. La résistance du gypse fer de lance est également de 8 GPa par méthode destructive, avec une même porosité également ( $N_t=11,2\%$ ) et de 16 GPa en non destructif. Enfin le faciès à interlits présente la plus faible résistance mécanique ( $R_c=4,3$  MPa). Les modules élastiques calculées sont ainsi les plus faibles (15 GPa en non destructif et 3,4 GPa par compression).*

#### IV. Conclusions

Dans cette première partie du chapitre, les propriétés poromécaniques du gypse ont été décrites en fonction des faciès étudiés : saccharoïde, matriciel, albastroïde, fer de lance ou orogénique (Tableau 32). Ainsi la taille et l'agencement des cristaux de gypse avec la présence en quantité variable de phases secondaires vont définir un réseau poreux plus ou moins développé. Le développement et la structuration de la porosité seront fortement dépendants de la morphologie et de la granulométrie. La porosité apparaît suffisamment développée et structurée pour permettre le passage de l'eau dans les gypses saccharoïdes (pur et à interlits), fer de lance et matriciel. Cette porosité va impacter les propriétés mécaniques de l'ordre de -1,6 GPa par pourcentage de porosité supplémentaire.

Le gypse matriciel présente une masse micro gypseuse enserrant des éléments plus grossiers mais ne dépassant que rarement le millimètre. Cela lui confère une porosité nanoporale à structure bimodale permettant un écoulement de faible vitesse. Ces éléments granulaires fins compactés lui confèrent également des propriétés mécaniques moyennes avec un module élastique égal à 22,7 GPa.

Les gypses saccharoïdes présentent une porosité micro porale d'environ 10%. Le gypse saccharoïde pur présente une structure unimodale et le gypse à interlits une porosité bimodale avec des interlits où se localisent des macropores, liés à la présence d'hétérogénéités minéralogiques (14%). La porosité est essentiellement microporale en lien avec leurs granulométries de quelques centaines de microns, ce qui favorise les espaces intergranulaires. Les propriétés mécaniques apparaissent assez similaires du faciès matriciel compte tenue de la porosité de même ordre. Le gypse saccharoïde à interlits du fait de ses hétérogénéités présente une résistance mécanique plus faible.

Le gypse fer de lance est quant à lui un faciès macrocristallin avec une porosité fortement connectée, de type macroporal. Cette porosité permet des écoulements rapides, toutefois des effets d'échelles ont rendus complexe la détermination de valeurs précises. Des éprouvettes de plus grande taille devraient être testées pour appréhender correctement le comportement du matériau. Par ailleurs, la présence de cristaux pluricentimétriques réduit la résistance mécanique du gypse fer de lance. Ce faciès confirme l'effet de la granulométrie sur la résistance mécanique et que la porosité n'est pas le seul facteur à prendre en compte pour expliquer les performances mécaniques.

### CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

**Tableau 32** Tableau récapitulatif de la caractérisation des gypses étudiés. \*Diamètres d'accès rayon correspondant à la taille de pore maximale donnant accès à la plus grande partie du volume poreux par intrusion de mercure. \*\* Le coefficient de dispersion traduit l'étalement des valeurs

	Gypse matriciel	Gypse saccharoïde pur	Gypse saccharoïde à interlits	Gypse albaströïde	Gypse fer de lance	Gypse orogénique
Teneur en gypse (%)	90.9	99.6	86.7	100	92	89
Autres minéraux	calcite, célestine, quartz, argiles	calcite	calcite, célestine, quartz, argiles, mica, microcline	//	calcite, célestine, argiles	calcite, célestine, quartz, argiles, microcline
Porosité en lame mince (%)	40*	15	6	3	6.3	1.1
diamètre des grains (µm)	400	300	250	> 1000	> 1000	quelques microns
Porosité totale à l'eau (N <sub>t</sub> )(%)	9,7 +/- 2,4	10,5 +/- 2,8	8,0 +/- 2,0	0,6 +/- 0,3	11,2 +/- 2,3	3,1 +/- 1,18
Porosité accessible (N <sub>48</sub> ) (%)	9,3 +/- 3,2	7,0 +/- 2,6	5,6 +/- 0,3	1,4 +/- 0,3	9,7 +/- 2,6	2,8 +/- 0,6
Porosité piégée (N <sub>p</sub> ) (%)	0,4 +/- 0,9	3,5 +/- 0,5	2,3 +/- 0,8	0,1 +/- 0,1	1,4 +/- 0,3	0,3 +/- 0,1
Porosité totale (N <sub>Hg</sub> ) (%)	9.4	12.4	11	1.8	4.5	3.6
Macroporosité (%)	32.3	69	57.5	72.3	80.5	55.2
Microporosité (%)	19.6	29.9	41.3	20.2	13.2	18.3
Nanoporosité (%)	48.1	1.1	1.3	7.5	6,3	26.5
Réseau de pore	bimodal	unimodal	bimodal	//	bimodal	//
Diamètre moyen des familles de pores (µm)	0.1 et 0.7	20	10 et 150	//	30 et 280	//
Diamètre d'accès* (µm)	0.03	4.2	3.1	2	8	0.2
Coefficient de dispersion**	11.3	1.6	2.3	22.7	6.1	65.3
Porosité totale estimée par microscopie optique (%)	40	15	6	3	6.3	1.1
Coefficient d'imbibition capillaire C <sub>1</sub> (g.m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup> )	21,1 +/- 6,1	13,3 +/- 11,9	49,9 +/- 9,2	0,2 +/- 0,2	48,1 +/- 38,9	2,45 +/- 1,1
Vitesse de propagation des ondes P (m/s)	3706 +/- 562	3390 +/- 378	2590 +/- 77	4402 +/- 716	3028 +/- 473	4062 +/- 274
Masse volumique (kg/m <sup>3</sup> )	2333 +/- 27	2280 +/- 35	2322 +/- 32	2308 +/- 22	2281 +/- 11	2320 +/- 2,8
Module d'élasticité dynamique E <sub>dyn</sub> (GPa)	22,7 +/- 0,6	20,5 +/- 0,4	15,9 +/- 0,3	36,1 +/- 1,2	16,8 +/- 4,8	29,9 +/- 6
Indice de continuité I <sub>c</sub> (%)	71 +/- 6	66 +/- 10	50 +/- 5	84 +/- 14	58 +/- 9	74 +/- 0,1
Fréquence de résonance (kHz)	11,4 +/- 1,5	21,7 +/- 2,0	7,7 +/- 1,1	16,5 +/- 1,3	16,8 +/- 1,7	16,4 +/- 2,8
Module d'élasticité modale E <sub>mod</sub> (GPa)	24,4 +/- 3,1	24,1 +/- 7,1	13,1 +/- 3,7	18,7 +/- 6,4	24,7 +/- 5,1	29,0 +/- 4,1

Les faciès « massifs » que sont l'albastroïde et l'orogénique, sont quant à eux sans structuration et sans porosité réellement développée. Pour le premier, la porosité est constituée de fissures non connectées. Pour le gypse orogénique, la compaction qu'a subi le matériau au cours de son, a conduit à la formation d'une masse de microcristaux compacts. La porosité résiduelle après une phase d'anhydritisation/hydratation est présente uniquement au niveau des inter-stratifications argileuses.

Cette partie a permis de mettre en évidence la diversité des propriétés poromécaniques du gypse à l'image des calcaires ou des grès avec des granulométries, des structures porales diverses qui vont impacter les propriétés de chaque faciès. La mise en place d'une classification basée sur ces paramètres trop peu présents dans la littérature, permettrait une meilleure compréhension du comportement des faciès gypseux et faciliterait la comparaison des résultats entre les différents travaux de la littérature (Figure 136). De plus, des écoulements internes dans la masse gypseuse pour une partie des faciès sont escomptés compte tenu de la connectivité des pores. C'est la mise en place de ces écoulements et leurs effets qui sont abordés dans la partie suivante.

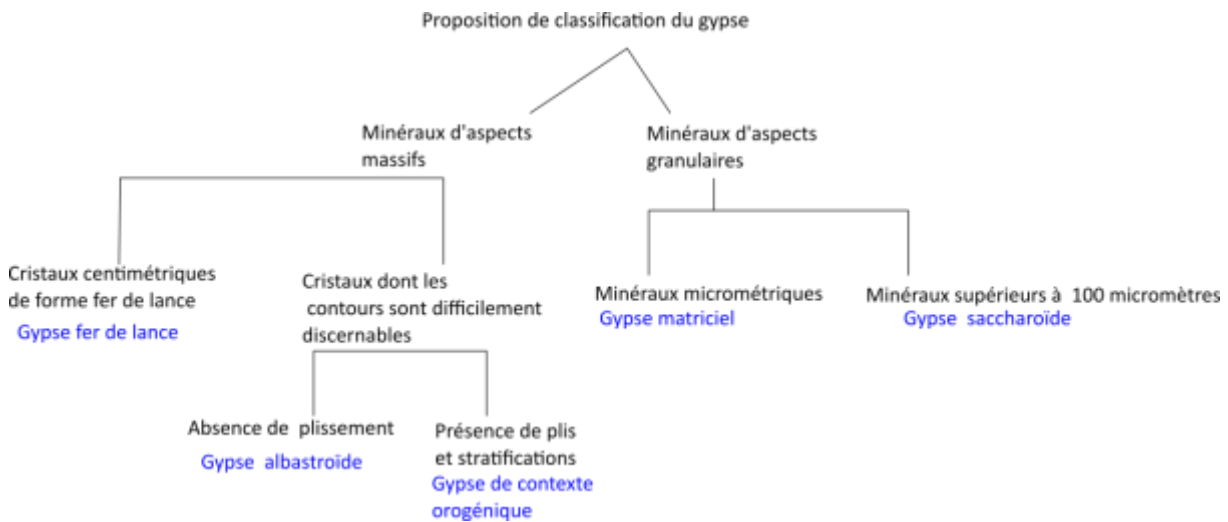


Figure 136 Proposition de classification des faciès du gypse à partir de propriétés granulométriques et texturales

## B. Résultats sur l'altération du gypse

Dans la partie précédente, les propriétés poromécaniques des différents faciès retenus dans cette étude ont été présentées. Cette partie est consacrée à l'évolution des propriétés précédemment décrites pour les faciès de gypse matriciel et des faciès saccharoïdes pur et à interlits soumis à une circulation d'eau pure. Un suivi conductimétrique est effectué sur le percolat récupéré. Les faciès albastroïde et orogénique sans réelle porosité structurée et connectée ne permettent pas la percolation d'eau pure au travers des éprouvettes testées (un essai de percolation sur le gypse albastroïde pendant 3 mois n'a pas permis de recueillir de fluide en sortie du système).

Le faciès de gypse en « fer de lance » n'a pas non plus été retenu bien que sa porosité permette un écoulement. La porosité bien connectée et présentant une morphologie sous la forme de canaux centimétrique entre les cristaux en forme de « fer de lance » a montré lors d'essais de faisabilité un écoulement avec un débit important (plusieurs litres par heure). On suppose que la dissolution dans ce type de matériau conduit à l'élargissement progressif des macropores et capillaires entre les cristaux de gypse et à leur désolidarisation progressive ce qui peut entraîner une perte totale de performance mécanique. Les 3 faciès retenus (gypse matriciel, gypses saccharoïde pur et à interlits) ont été mis en percolation et l'évolution des

différents paramètres notamment la porosité à l'eau et les propriétés mécaniques est mesurée sur chaque éprouvette avant et après percolation.

Des paramètres complémentaires tels que la porosimétrie par intrusion de mercure sont mesurés à partir de sections de un cm des éprouvettes post percolation de l'amont vers l'aval afin de mettre en évidence des gradients relatifs à une progression au cours du temps de la dégradation du matériau sous l'effet de la dissolution (Figure 137). La partie basse des éprouvettes a également fait l'objet d'observation en lame pétrographique pour l'observation de la variation minéralogique de la texture.

Après 1 mois de percolation, Des gradients d'altérations se mettent en place dans les premiers centimètres des éprouvettes à partir du point d'entrée du fluide. Les faciès saccharoïdes ont développé des phénomènes de digitations ou chemins préférentiels (macropores). Ce phénomène se met en place suffisamment rapidement dans la roche saline qu'est le gypse et peut être observé à l'échelle d'un essai de laboratoire.

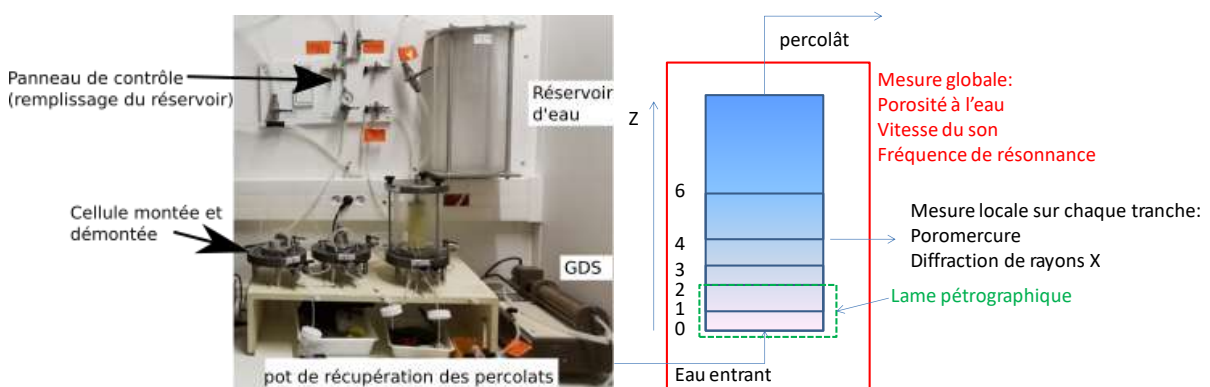


Figure 137 A : Illustration du montage expérimentale de percolation. B : Schéma de découpe des échantillons pour le suivi post percolation

## I. Suivi du taux d'altération et de la minéralogie du gypse avec la percolation

Un montage expérimental de percolation raccordé à un système d'air comprimé pour maintenir une pression hydraulique constante (voir chapitre 2) est utilisé pour altérer de manière constante les différents faciès gypseux. L'eau de percolation est de l'eau ultra-pure (environ  $15 \text{ mS.cm}^{-1}$ ) ce qui va générer une dissolution du gypse à son contact. Au fur et à mesure de la progression du fluide dans les éprouvettes, l'eau se sature et diminue en agressivité jusqu'à saturation complète en gypse dissous ce qui arrête le processus de dissolution du matériau. L'utilisation de cette eau vise à simplifier le suivi chimique des percolats et à favoriser la dissolution dans le temps (cas le plus désavantageux) pour accélérer le processus compte tenu de la durée de la thèse. L'évolution des débits pendant l'expérience est donnée en (Annexe III.3.A).

L'objectif est de mettre en évidence un potentiel gradient d'altération du gypse, sa progression en profondeur dans l'échantillon, son évolution au cours du temps (soit la durée  $t$  pour apparaitre de manière quantifiable, la vitesse de progression de l'altération....). L'altération des faciès « granulaires » à savoir dans le gypse saccharoïde pur et à interlits et le gypse matriciel sont testés en percolation tel que décrit dans le chapitre 2 avec des durée de 1 et 2 semaines, 1 et 2 mois (un lot d'éprouvette est utilisé pour chaque pas de temps).



## 1) *Évaluation du taux d'altération (perte de matière) avec le temps*

### a) Gypse matriciel

L'eau de percolation (percolat) obtenue en sortie de l'éprouvette est saturée ou quasi saturée pour l'ensemble des éprouvettes de gypse matriciel (à l'exception des éprouvettes GSI27 (1semaine) et B1GM307 (2mois) soit 2 éprouvettes sur 12) (Figure 138). La première éprouvette a montré une évolution rapide et l'initiation d'une fissure alors que la seconde a quant à elle montré une dissolution qui a accéléré l'écoulement et réduit dans ce cas le temps de contact du fluide dans l'éprouvette (notamment visible sur la (Figure 138B) entre 400 et 800 h environ avant de revenir à une vitesse d'altération en accord avec celle observée pour les autres éprouvettes. Cet état transitoire n'est pas associé au développement de chemin préférentiel car aucune éprouvette de ce faciès n'en a développé, les chemins étant visibles clairement en fin d'essai à partir des faces d'entrée et sortie du fluide. Les percolats étant saturés, les taux de dégradation du gypse par dissolution sur la Figure 138 sont uniquement influencés par le débit. L'estimation de la perméabilité à partir des débits et de la surface des éprouvettes est de l'ordre de  $1.10^{-5} \text{ m.sec}^{-1}$ . Le faciès matriciel présente des taux de dégradation du gypse compris entre  $1.10^{-4}$  et  $1.10^{-5} \text{ g.m}^2.\text{s}^{-1}$  (Figure 138). Ces taux de dégradation par dissolution du gypse sont relativement importants (plusieurs centaines de grammes par mètre carré et par heure) mais s'explique par l'utilisation d'un fluide quasiment pur. L'expression est ici faite en  $\text{m}^2$  pour uniformiser le taux de dégradation à partir des éprouvettes de diamètre 50 mm utilisées (soit environ  $20 \text{ cm}^2$ ).

Le débit de l'eau percolée au travers du faciès matriciel subit une réduction initiale avant de se stabiliser après une dizaine d'heure d'essai. Cette diminution fait passer le débit de  $1.10^{-3}$  à  $1.10^{-4} \text{ L.h}^{-1}$ , soit un facteur 10. Le volume d'eau percolé est analysé par conductimétrie pour déterminer la quantité de gypse dissous. Le protocole est le même que celui utilisé pour l'analyse de la dissolution et est décrit dans la partie suivante (3.C). Les masses récupérées sont de l'ordre de 0,2 g pour les premiers points de mesure et de l'ordre de 0,4g pour les pas de temps mensuels. Ainsi, le gypse matriciel ne présente pas de variation significative dans la quantité d'éléments dissous au cours de l'essai de percolation et sur la durée des deux mois de percolation, à l'exception de l'éprouvette B1GM307 dont le débit augmente de manière temporaire.

Il s'agit de l'ouverture d'une fissure qui s'est colmatée par la suite. Le fluide récupéré étant saturé, la perméabilité qui contrôle le débit, est donc le facteur contrôlant la dissolution et la profondeur à laquelle le fluide atteint sa saturation. L'analyse des eaux de percolations donne une évolution de la masse de gypse érodée qui passe ainsi de  $3,4.10^{-2} \text{ g.j}^{-1}$  à  $5,9.10^{-3} \text{ g.j}^{-1}$ . Ce ralentissement pourrait avoir 2 origines,

- soit l'obstruction partielle de la sortie du dispositif. En effet, un papier filtre est placé en sortie de dispositif pour bloquer les éléments insolubles et éviter de boucher les tuyaux de sortie. Mais il est possible que ces insolubles réduisent le débit de l'eau au travers du filtre de sortie. Ce phénomène a principalement été observé pour les 2 autres faciès étudiés.
- Soit un lessivage initial d'éléments plus solubles ou non fixés dans la matrice qui accroîtrait la dissolution.

Au final, la dissolution du gypse est régulièrement considérée comme un phénomène de surface. Dans le cas du gypse matriciel, la réduction de la longueur des éprouvettes (hauteur 10 cm) est de l'ordre de 0,3 à 0,4 mm sur l'ensemble de l'expérience à partir du côté basale.

## CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

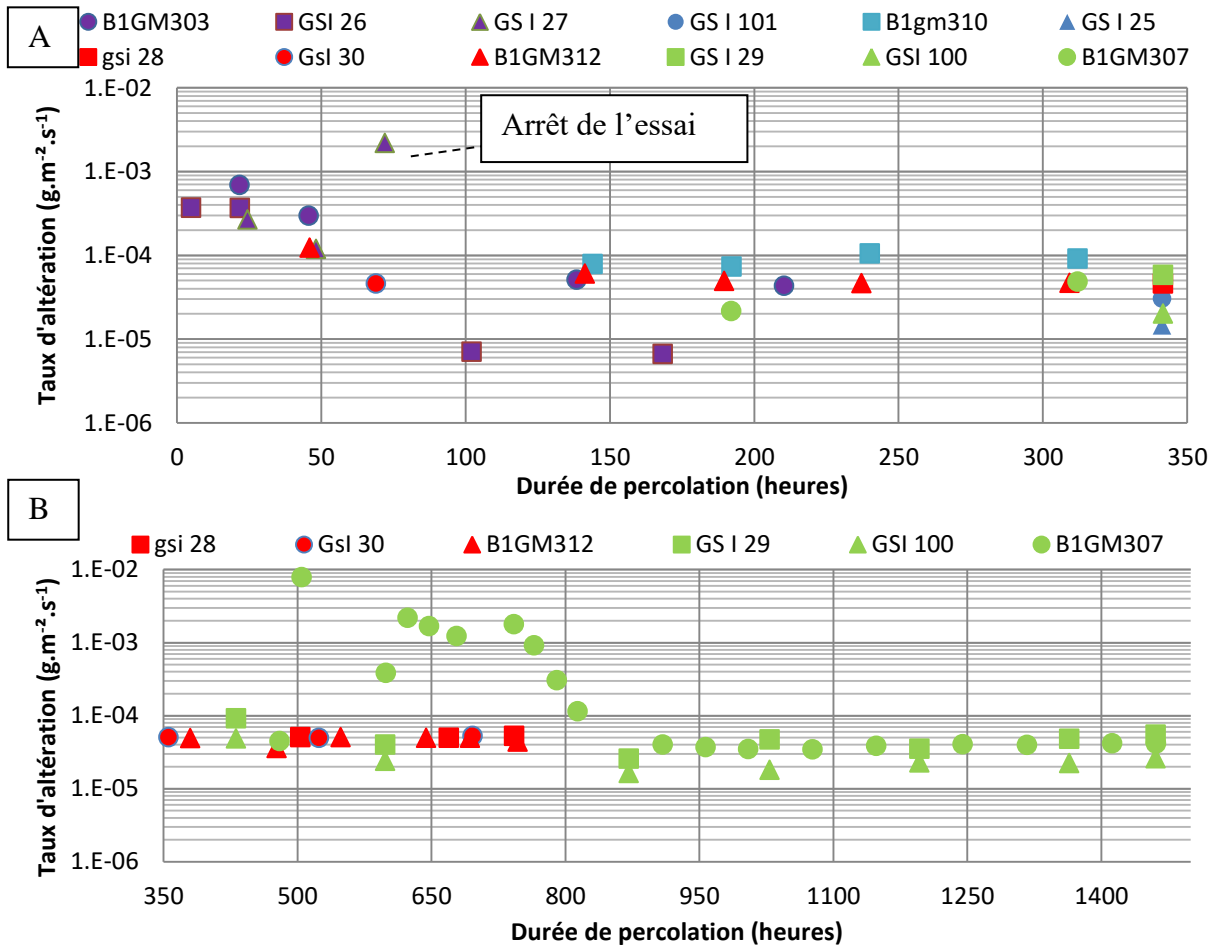


Figure 138 Suivi de percolation du gypse matriciel pur. Evolution du taux de dégradation du gypse par dissolution après A : 1 semaine (violet) et 2 semaines (bleu) de percolation. B: 1 mois (rouge) et 2 mois (vert) de percolation.

### b) Gypse saccharoïde pur

Le taux de dégradation du gypse saccharoïde pur est compris entre  $1.10^{-2}$  et  $1.10^{-4} \text{ g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$  en fonction des éprouvettes (Figure 139 A et B). Pour l'ensemble des éprouvettes à 1 et 2 semaines, la récupération des percolats a révélé une eau quasiment saturée pour l'ensemble de la période d'essai (15 mmole/L). Pour les échantillons avec des durées de percolations plus importantes, il a été constaté le développement d'un chemin préférentiel ayant canalisé une large partie de l'écoulement et donc augmenté le débit (Annexe III.3.A). Ces augmentations ont été temporaires. Lors du démontage du dispositif expérimental, des amas de sédiments obstruant le papier filtre ont été récupérés. **L'accumulation de ces sédiments a obstrué le canal préférentiel et diminué le débit.** La conductivité des percolats qui traduit la teneur en éléments dissous est directement lié au débit. L'accélération de l'écoulement a largement diminué la conductivité, le temps de résidence du fluide dans la cellule n'étant pas assez important pour saturer toute l'eau qui percole.

Les taux de dégradation pour le gypse saccharoïde pur sont légèrement supérieurs à ceux obtenus pour le gypse matriciel ( $1.10^{-4}$  et  $1.10^{-3} \text{ g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ ). Les pas de temps hebdomadaires (Figure 139A) montrent une bonne homogénéité dans leur évolution avec une absence de mouvement dans la première semaine d'essai puis une accélération du taux de dégradation du gypse sur la deuxième semaine. Cela est le signe que la dissolution est active, permettant d'introduire un plus grand volume d'eau dans l'éprouvette tout en conservant la saturation du fluide en sortie. Pour les mesures au-delà de 1 mois, les résultats sont moins homogènes avec des fluctuations en cours d'essais liées au développement des digitations et de leur

### CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

obstruction. L'ouverture de ces conduits centralise une large partie de l'écoulement et augmente le débit (Figure 140). Une partie de ces conduits s'obstruent par arrachage d'éléments, ce qui ralentit à nouveau le débit. Le taux de dégradation du gypse reste néanmoins stable sur les éprouvettes à 1 mois. Au-delà de 1000 heures d'essais (environ 41 jours), il est à noter une rupture de pente entraînant une augmentation de la dégradation qui bien que légère montre sur les éprouvettes GSII7 et B2GS358.

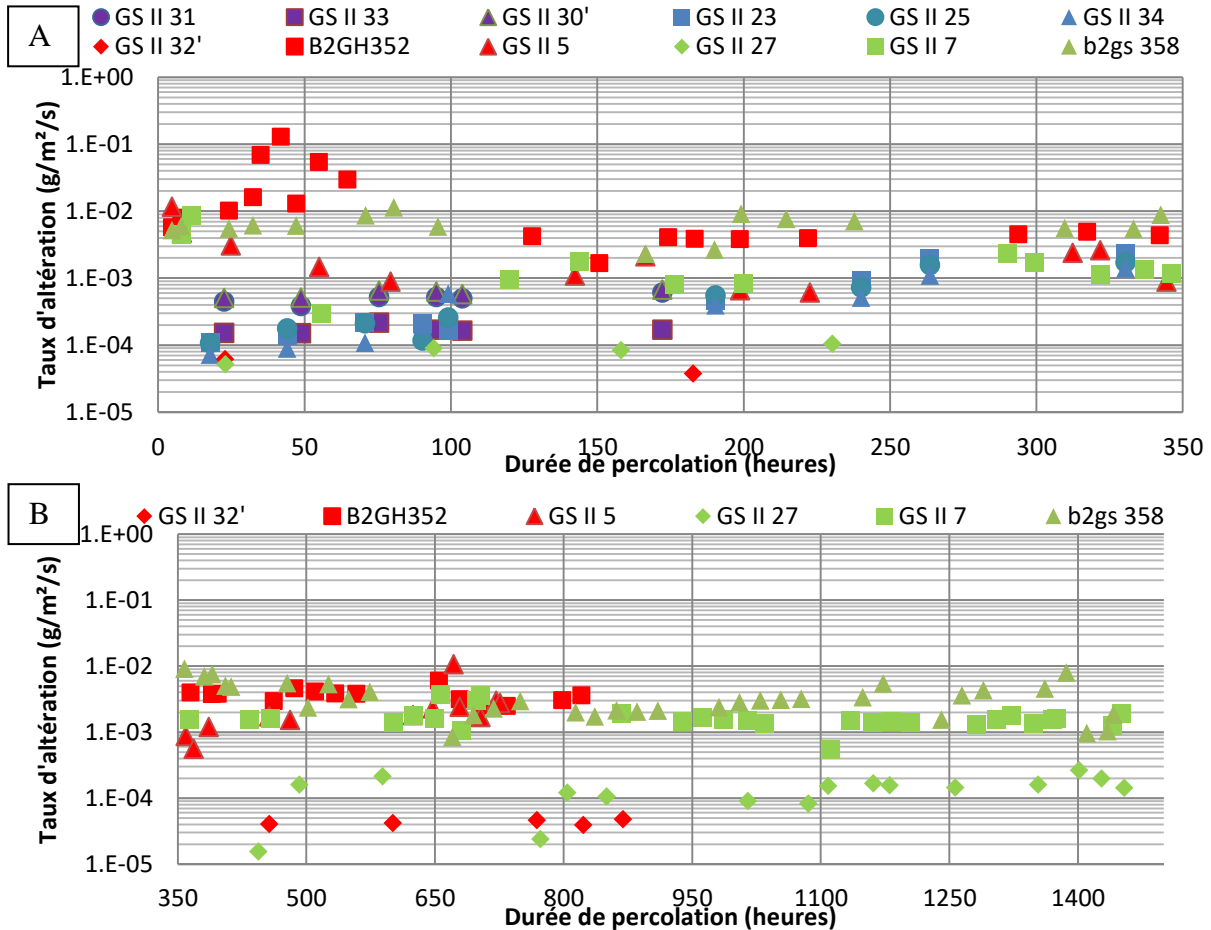


Figure 139 Suivi de percolation du gypse saccharoïde pur. A : Evolution du taux de dégradation du gypse à 1 semaine (violet) et 2 semaines (bleu).. B : Evolution du taux de dégradation du gypse à 1 mois (rouge) et 2 mois (vert).

Ainsi l'essai est opérationnel pour une période de 1 mois environ de percolation. Au-delà, l'apparition des chemins préférentiels conduits à une augmentation des hétérogénéités entre éprouvette du suivi de percolation (initiation, dimensions, obstruction ou non des conduits). L'évolution du débit affecte la saturation du percolat. Le fluide ne pouvant atteindre la saturation si l'écoulement est trop rapide. La masse dissoute passe ainsi de 0,1 g.jours<sup>-1</sup> pour les deux premières semaines de percolation à plus de 0,8 et 0,4 g.jours<sup>-1</sup> respectivement après 1 et 2 mois de percolation.

Le faciès saccharoïde pur développe une augmentation progressive du taux d'altération du gypse lié à l'augmentation du débit, les percolats étant saturés. Le taux d'altération initial est ainsi proche de celui du faciès matriciel. À partir d'un mois d'essai, le développement de chemins préférentiels vient perturber de manière transitoire les relevés avec des augmentations de débits et une sous-saturation du fluide en sortie d'essai. Ce phénomène est inhibé par l'obstruction du conduit par des sédiments arrachés à la paroi. Une analyse DRX de ces sédiments à révéler une composition des minéraux déjà présents dans la caractérisation initiale (calcite, quartz). Il s'agit donc d'un phénomène d'arrachage. La dissolution entraîne

pour ce faciès une réduction de la hauteur de l'ordre de 1 à 2,5 mm. La réduction est relativement constante sur l'ensemble de la mesure.



Figure 140 Photographie de chemins préférentiels développées dans des gypses saccharoïdes après altérations par percolation pendant 2 mois. À gauche le faciès pur, à droite le faciès à interlits

### c) Gypse saccharoïde à interlits

Le faciès saccharoïde à interlits présente des taux de dégradation en début d'expérimentation de l'ordre de  $1.10^{-3}$  à  $1.10^{-2}$   $g.m^2.sec^{-1}$  (Figure 141A et B). Ces taux de dégradation augmentent rapidement pour une partie des éprouvettes avec le développement rapide de chemins préférentiels (moins d'une semaine). Comme pour le faciès précédent une fois la percée réalisée, le conduit est obstrué par des grains arrachés et le débit diminue (Annexe III.3.B). Pour des périodes inférieures à 1 mois, le volume de percolats est saturé, ainsi comme pour les premiers faciès, le débit sera le principal facteur pouvant affecter le taux d'altération. Entre 1 et 2 mois, l'eau devient sous-saturée, jusque  $0,5 g.L^{-1}$ . Cela est visualisable sur la Figure 141B entre 800 et 1440 heures, avec des chutes du taux de dégradation jusque  $1.10^{-4}$   $g.m^2.sec^{-1}$  en lien avec le débit. Une augmentation du taux de dégradation traduit l'augmentation du débit mais avec un fluide restant saturée ou presque. Les fluctuations importantes observées sur les pas de temps à 1 et 2 mois maintiennent toutefois un taux de dégradation moyen autour de  $1.10^{-2}$   $g.m^2.sec^{-1}$ . Le développement des chemins préférentiels (Figure 140) dès les premières mesures conduit à une forte disparité inter éprouvette dans les volumes dissous. Cette disparité liée a notamment été décrite lors de la caractérisation du faciès, notamment pour l'orientation d'interlits argileux impactant la vitesse de propagation des ondes ( $V_p$ ) (voir 3.A). Ainsi pour un même pas de temps des éprouvettes voient leurs masses réduites d'un facteur trois par rapport à une autre (à un mois l'échantillon a perdu 96,2 g pendant l'essai contre 47,30 pour l'éprouvette GST3). Comme pour le gypse saccharoïde, la dissolution est inférieure à 0,5 g/j à 1 semaine et augmente de manière rapide et continue sur le premier mois d'essai (environ 3 g/j).

Le gypse saccharoïde à interlits présente ainsi une évolution rapide avec le développement de chemin préférentiel, générant de même une forte variabilité inter éprouvette. Une fois l'essai initié, le débit augmentera avec la dissolution et le développement des chemins préférentiels. Cette augmentation de débit va dans les premiers temps contribuer à favoriser le taux de dégradation. Pour des débits dépassant un seuil d'environ  $1.10^{-5} L.s^{-1}$ , le taux de dégradation diminue rapidement. La durée de contact dans la cellule de percolation devant insuffisant pour dissoudre de manière importante les éprouvettes. Cela se traduit par un taux de masse dissoute par jours plus faible à 2 mois que 1 mois. La réduction de la taille des éprouvettes de quelques millimètres de hauteur sur les premiers pas de temps dépasse un centimètre pour les pas de temps suivants, les chemins préférentiels devant favoriser l'arrachement des éléments solides ainsi que le lessivage des interlits de ce faciès.

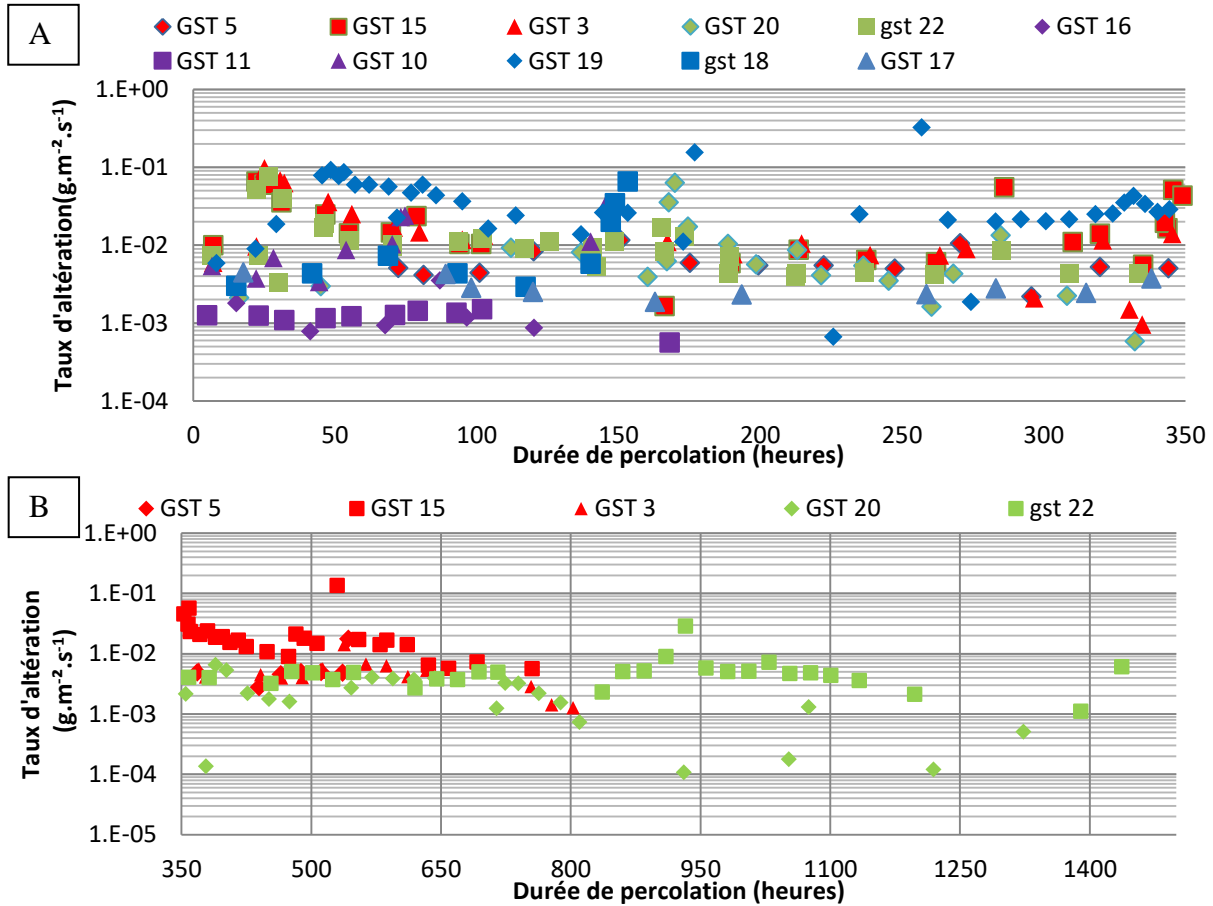


Figure 141 Suivi de percolation du gypse saccharoïde à interlits ; A : Evolution du taux de dégradation à 1 semaine (violet) et 2 semaines (bleu).. B : Evolution du taux de dégradation à 1 mois (rouge) et 2 mois (vert).

## 2) Synthèse

La réalisation des essais de percolation confirme la possibilité de réaliser des écoulements à travers une masse de gypse comme le laissait présager la caractérisation microstructurale des faciès dans la partie 3.1. L'eau collectée post percolation présente une saturation en gypse dissous, signe de la dissolution rapide du gypse. Le passage en ICP multi éléments a établi la présence majoritaire de calcium et de sulfates dans la solution. Cela apparaît logique au vue de la composition minéralogique des échantillons et des cinétiques de dissolution plus faible des autres minéraux (quartz, calcite...). La diminution de la longueur des éprouvettes apparaît comme limitée de l'ordre de quelques millimètres pour une percolation allant jusqu'à 2 mois (Tableau 33). Ce taux de récession est cohérent avec la littérature comme présentée dans le chapitre 1 (Figure 58) où les taux de récession par an pour des surfaces de gypses exposées aux précipitations et à des percolations en milieu naturel sont estimés entre 0 et 50 mm/an. Cette réduction est plus importante pour le faciès saccharoïde à interlits qui développe de manière précoce des chemins préférentiels qui favorisent l'arrachement de grains et la réduction de la taille de l'éprouvette.

Les chemins préférentiels entraînent des augmentations temporaires du débit avant qu'ils ne s'obstruent par comblement de minéraux insolubles arrachés et que le débit de l'eau ne retrouve des valeurs proches des débits enregistrés au début de l'essai de percolation. Les éléments insolubles obstruant les chemins préférentiels n'ont pas été collectés avec les percolats, en cours d'essais. Le papier filtre à 40 µm et la pierre poreuse dans le montage expérimentale ont bloqués ces éléments dans les chemins préférentiels. Aucun élément insoluble n'a été visualisé dans les eaux percolés. Les éléments insolubles ont été récupérés

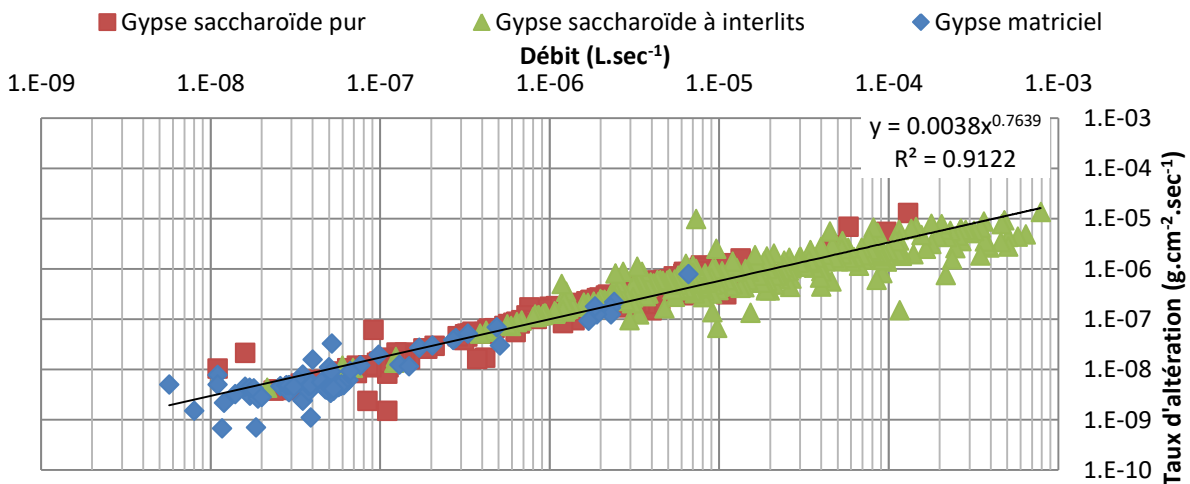
### CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

lors du démontage des essais. Ces masses ont été collectées et analysés par méthode DRX. Leurs compositions est identique aux phases minérales identifiées dans la caractérisation des faciès.

**Tableau 33 Réduction de la longueur des éprouvettes avec la percolation et estimation de la récession sur 1 an**

Durée de percolation (semaine)	Récession moyenne (mm)				Récession estimée sur 1 an (mm)			
	1	2	4	8	1	2	4	8
Gypse matriciel	-0.3	-0.3	-0.4	-0.3	-17.0	-8.4	-4.2	-4.0
Gypse saccharoïde pur	-2.0	-1.6	-1.5	-2.6	-103	-41	-18	-16
Gypse saccharoïde à interlits	-1.4	-2.5	-15.8	-12.5	-73.1	-63.8	-190	-74.9

**Un des principaux enseignements de cet essai est le contrôle du taux de dégradation par le débit** (Figure 142). Le gypse matriciel dont le débit est le plus faible, voit les percolats saturés pendant toute la durée de l'essai. Ainsi le taux de dégradation apparait constant avec des valeurs autour de  $1.10^{-4} \text{ mmole.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ . La faible vitesse d'écoulement initiale entraine une dissolution principalement de la partie basale et ne permet pas de modifier le débit sur la période d'essai considéré de manière significative. Le gypse saccharoïde pur présente des percolats saturés en gypse dissous en sortie de cellule pendant toute la durée de l'essai malgré le développement de chemins préférentiels. Ces derniers finissent par s'obstruer avec des éléments arrachés de type quartz, argiles comme identifiés par DRX. Le taux de dégradation pour les faciès saccharoïde pur est de l'ordre de  $1.10^{-4} \text{ mmole.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$  contre  $1.10^{-2} \text{ mmole.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$  pour le faciès saccharoïde à interlits. Ce dernier développe des chemins préférentiels dès les premiers jours de percolation. Ce qui entraine une augmentation de débit suffisamment forte pour que l'eau de percolation sorte de la cellule sous-saturée (la saturation est de l'ordre de 2300 à 2500  $\mu\text{S/cm}$  en conditions ambiantes). Cette accélération entraine le fluide plus en profondeur avant d'atteindre sa saturation, ce qui conduit à la genèse d'un gradient d'altération et son évolution en profondeur avec l'augmentation du débit. Le débit a donc un rôle moteur dans la dissolution lorsque le fluide sort saturer de la cellule de percolation. Le volume supplémentaire dissolvant davantage l'échantillon, le taux de dégradation augmente de manière linéaire avec le débit. Dans le cas étudié ici, la saturation en sortie d'essai n'est plus atteinte à partir d'un débit seuil d'environ  $1.10^{-5} \text{ L.h}^{-1}$ . Une fois le débit seuil atteint la dissolution continue de s'accroître de manière exponentielle et de manière plus hétérogène entre les échantillons. Le débit bien qu'encore important ne devient plus le seul paramètre influençant le taux de dégradation la dissolution.



**Figure 142 : Estimation du taux de perte de masse par jours de percolation en fonction de la durée d'essai.**

## II. Évolution minéralogique

Afin d'identifier l'évolution minéralogique des éprouvettes, un sciage en section d'environ 1 cm d'épaisseur est réalisé sur une partie du panel d'étude. Le sciage (à l'eau) a été réalisé pour une éprouvette par faciès et par pas de temps, soit 12 échantillons sectionnés. Les tranches réalisées ont servi à la réalisation d'essais de porosimétrie mercure qui seront détaillés plus loin et d'essais de diffraction des rayons X. Cette série d'essai vise à mesurer la potentielle migration de certains minéraux, leur dissolution ou substitution.

### 1) *Gypse matriciel*

Les résultats des quantifications réalisés avec le logiciel TOPAS sont synthétisés dans la Figure 143. La première constatation est l'absence de nouvelle phase minérale ou de disparition de phase. Les variations de teneur en gypse sont de 7% au maximum entre les échantillons. Au sein d'un même échantillon, elle ne dépasse pas les 5% entre la section à la plus faible teneur et celle à la plus forte valeur. Les teneurs en quartz sont relativement constantes pour l'ensemble des échantillons de l'ordre de 1 à 2%, ce minéral étant peu sensible à la dissolution. La teneur en célestine (minéral peu soluble) est comprise entre 0,9 et 3%. L'éprouvette à une semaine possède pour 2 sections de mesures des teneurs supérieures à 6% en ce minéral. De même l'éprouvette à 2 semaines à une teneur de 4,5% mais un seul point.

La calcite est le minéral avec la plus grande fluctuation de 4 à 11,4% sur l'ensemble des mesures. Ces variations ne mettent toutefois pas en évidence de réel gradient sur les premiers pas de temps. Sur le pas de temps à 2 mois, il est obtenu une teneur supérieure à 10% sur les 3 premiers points de mesures avant une diminution de la teneur vers 7 à 8% sur les points suivants. **La méthode Rietveld donnant des résultats en relatif, une diminution de la quantité de gypse se traduit par une augmentation de la teneur des autres minéraux.** La même fluctuation pour le quartz est obtenu, dont la teneur est plus importante sur ces 3 premiers points. Ainsi cette éprouvette comportait initialement une teneur en calcite plus importante que le reste des échantillons testés. Une autre hypothèse mais semblant peu probable dans ces conditions d'expériences est la précipitation de calcite dans l'eau sursaturée, comme décrit dans les conditions naturelles par (Toulemont, 1986; Zaier, 2021).

### 2) *Gypse saccharoïde pur*

Le gypse saccharoïde ne présente pas d'évolution notable sur l'ensemble des mesures (Figure 143). La teneur en gypse est toujours supérieure à 99%, la célestine de 0, 1 à 0,5% et le quartz inférieur à 0,1%. Il est à noter la présence dans l'éprouvette témoin d'une teneur minimale en sidérite (<0,5%) sur une partie de ses sections, qui ne se retrouvent pas dans les éprouvettes ayant subies la percolation. Une différence mineure de composition entre les blocs dont elles sont issues paraît l'explication probable de cette distinction.

### 3) *Gypse saccharoïde à interlits*

Le gypse saccharoïde à interlits pour l'ensemble des points de mesure présentent des teneurs en gypse supérieure à 90% et jusque 99% pour certains points (Figure 143). Alors que la quantification initiale donnait des résultats de l'ordre de 86%. Cela montre déjà la variabilité des éprouvettes entre elles. Il est à noter également une forte variabilité inter échantillon avec des teneurs en calcite supérieure pour les éprouvettes à 1 semaine et 2 semaines, contre une quasi absence de calcite dans les éprouvettes à 2 et une semaine. Parmi les autres minéraux, ils sont tous en quantité très faibles (< 1%). Seul la phlogopite pour l'éprouvette à une semaine est encore présente à une teneur supérieure. L'effet de lessivage semble donc bien en place par rapport à la caractérisation initiale.

## CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

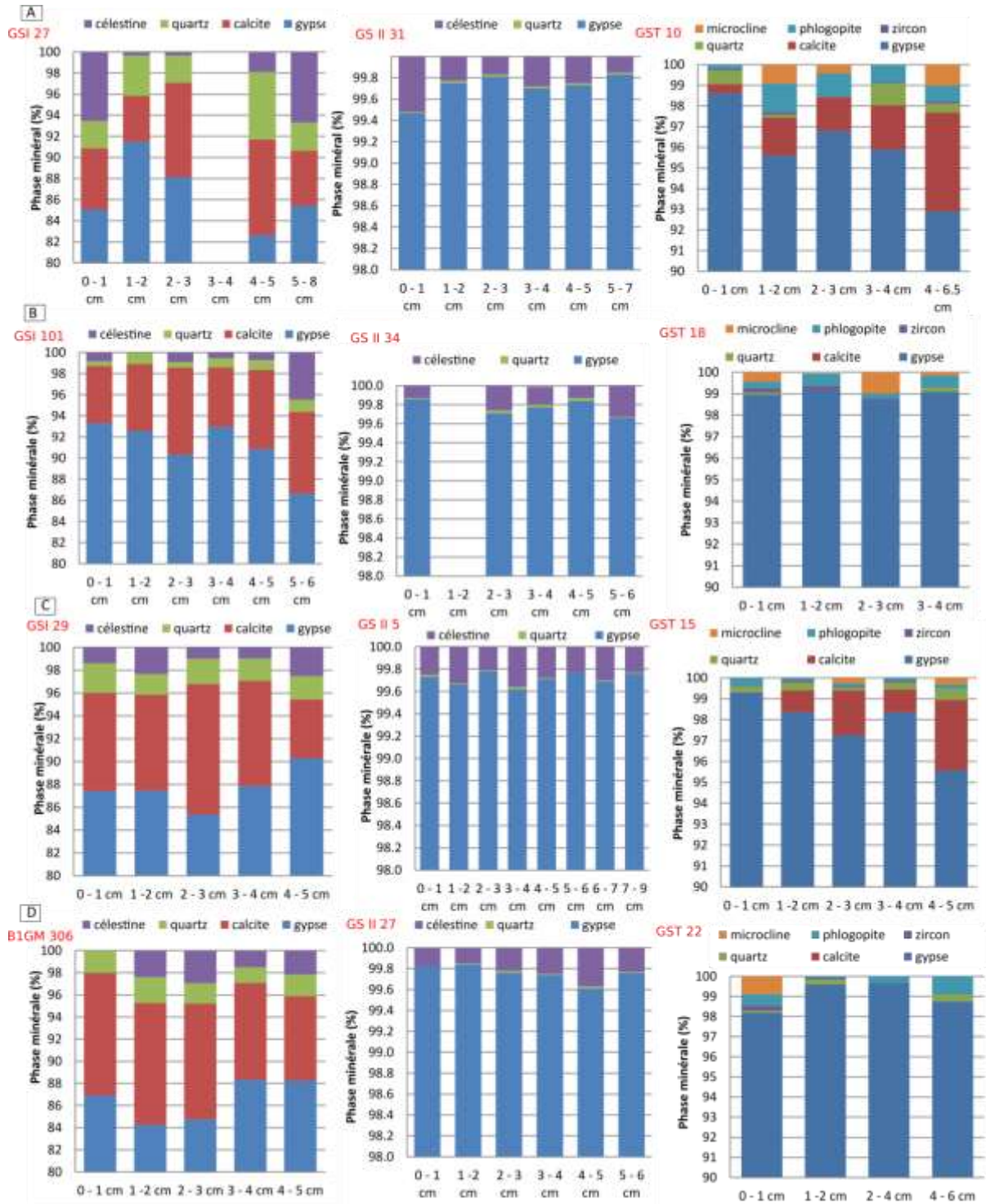


Figure 143 Évolution de la composition du gypse après percolation. A : 1 semaine, B : 2 semaines, C : 1 mois, D : 2 mois

*Synthèse* : L'analyse de la composition minéralogique des éprouvettes par méthode DRX et Rietveld après percolation ne permet pas de mettre en évidence des effets de la dissolution ou de lessivage. Les différences entre sections d'une même éprouvette sont déjà importantes et limite l'interprétation d'un même échantillon. Les variations entre sections et éprouvette sont causées par des variabilités inter et intra éprouvette.



### III. Évolution de la porosité des gypses étudiés

Après avoir été soumise aux cycles d'altération par percolation, les éprouvettes ont fait l'objet d'une nouvelle caractérisation de l'ensemble des paramètres précédemment décrits. L'évolution de la porosité sera ainsi abordée du point de vue de son évolution totale ( $N_t$ ) et de sa connectivité avec l'évolution de la porosité accessible et piégée. Pour déterminer l'effet de la dissolution et si un gradient de dissolution impactait les éprouvettes, il est procédé au sciage en tranche d'1 cm d'épaisseur d'une éprouvette pour chaque pas de temps et faciès mis en en percolation. Les mesures sont réalisées avec comme repère 0 cm indiquant la base ayant été soumise à l'entrée d'eau pendant la percolation. L'ensemble des valeurs sont regroupées en annexe III.3.C.

Des lames minces prévues pour être observées au microscope optique ont également été réalisées dans la partie basale des éprouvettes où le flux d'eau pénétrait et donc à l'endroit où les conditions de dissolution étaient les plus sévères. Elles permettront de rechercher les sites de dissolution et leurs traces. La porosité ne montre pas d'évolution importante sur les pas de temps inférieur à 1 mois pour les faciès saccharoïdes purs et matriciel. À la suite de cette période, la porosité accessible augmente au détriment de la porosité piégée. Cette observation est confirmée par la porosimétrie par intrusion de mercure où la mise en place d'un gradient avec l'élargissement du diamètre de pore est observable sur les premiers centimètres des éprouvettes. La porosité totale augmente néanmoins de manière importante pour le gypse saccharoïde (les 2 faciès), signe d'une augmentation du volume de vide. Cette porosité est principalement causée par le développement de canaux préférentiels traversant les éprouvettes comme décrits ci-avant. À partir des vitesses de propagation des ondes P des lots d'éprouvettes testées, un indice de continuité post percolation est calculé selon la méthode proposée par Tourenq et al. (1971). Les vitesses de propagation seront discutées seront discutés dans le point suivant pour mettre ici en avant l'évolution de la porosité fissurale ( $N_{\text{fiss}}$ ) et poral ( $N_{\text{pore}}$ ). Ces porosités sont déduites graphiquement déduites (Figure 135) à partir de la porosité totale ( $N_t$ ) et de l'indice de continuité.

Le coefficient d'imbibition permet de quantifier la vitesse d'imbibition d'un matériau, cette vitesse étant directement dépendante de la porosité, de ses dimensions et de sa connectivité. Cette mesure est donc complémentaire pour la caractérisation des réseaux poreux et leurs évolutions. Un élargissement des capillaires se traduit par une réduction de la cinétique d'imbibition et par la réduction de la tension de surface. Une meilleure homogénéité de la porosité peut quant à elle augmenter cette cinétique par la réduction de la porosité piégée et l'augmentation ( $N_p$ ) de la porosité accessible ( $N_{48}$ ). Toutefois l'essai est peu pertinent lors du développement de chemins préférentiels qui réduisent la surface d'essai et sont de dimensions trop importante pour permettre un écoulement capillaire.

#### 1) *Gypse matriciel*

##### a) Évolution de la porosité

L'évolution de la porosité à l'eau est synthétisée dans le Tableau 32 et le Figure 144. La dissolution du gypse de type matriciel sur une période de 2 mois, ne permet pas de mettre en évidence une évolution significative de la porosité totale qui reste comprise entre 0 et 1%. Cette faible évolution est inférieure aux écarts types mesurées et ne peut ainsi pas être considéré comme pertinente. Les écarts types sont de l'ordre de 2% pour la porosité ouverte et totale et inférieur à 1% pour la porosité piégée. Au pas de temps 2 mois, Il est à noter néanmoins une réduction de la porosité piégée de -1,6% avec un écart type de 0,9%. Pour rappel, la porosité piégée correspond au volume de gaz piégée dans la structure porale. Lors de la caractérisation du matériau, la porosimétrie par intrusion de mercure (PIM) a révélé une

## CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

structure de type bimodale ce qui favorise le phénomène de piégeage par court-circuit (Bousquie, 1979). **La réduction de la porosité piégée indique une évolution des dimensions de pores réduisant ce phénomène, par l'élargissement des diamètres initiaux par exemple. Ce qui peut être quantifié par la porosimétrie mercure.**

Après une semaine de percolation, la porosité quantifiée par intrusion de mercure augmente de manière importante les parties basales des éprouvettes (jusqu'à 3 cm). L'éprouvette à une semaine (GSI 27) présente une porosité mercure supérieure à la caractérisation initiale (12,4% dans la section 5-8 cm contre 9,4%). La porosité de cet échantillon augmente jusqu'à 20% sur les deux premiers centimètres testés. Cette augmentation s'accompagne d'une diminution de la nano porosité et de l'augmentation de la microporosité. Cet effet de la dissolution sur la taille est confirmé par les diamètres moyens. Le pic principal de  $0,7 \mu\text{m}$  de la caractérisation s'élargit à des valeurs supérieures à  $5 \mu\text{m}$  sur les deux premiers centimètres. La modification de la porosité est également mise en évidence par la forte augmentation des coefficients de dispersion sur les deux premiers centimètres. (Figure 147 A et B).

Après deux semaines de percolation, la porosité mercure augmente sur la tranche 1-2 cm à 15,6%. Les autres sections ne présentent pas d'évolution importante sur le volume global de mercure injecté (Nhg). En revanche, la nanoporosité diminue au détriment de la microporosité sur les trois premiers centimètres. Cette modification est également visible par les coefficients de dispersion supérieurs à 20 sur les trois premiers centimètres. Les diamètres moyens de pores sont quant à eux affectés par une augmentation du pic à  $0,1 \mu\text{m}$  en termes de volume et l'augmentation du pic principal ( $0,7 \mu\text{m}$ ) à des valeurs de 2 et  $4 \mu\text{m}$  sur les premiers centimètres de l'éprouvette. Les autres sections présentent des diamètres de  $1 \mu\text{m}$ , ce qui peut signifier le développement de la dissolution sur l'ensemble de la hauteur de l'échantillon, mais de manière encore limitée. Les autres paramètres (coefficients de dispersions, ration nano/microporosité) étant encore proche de la caractérisation.

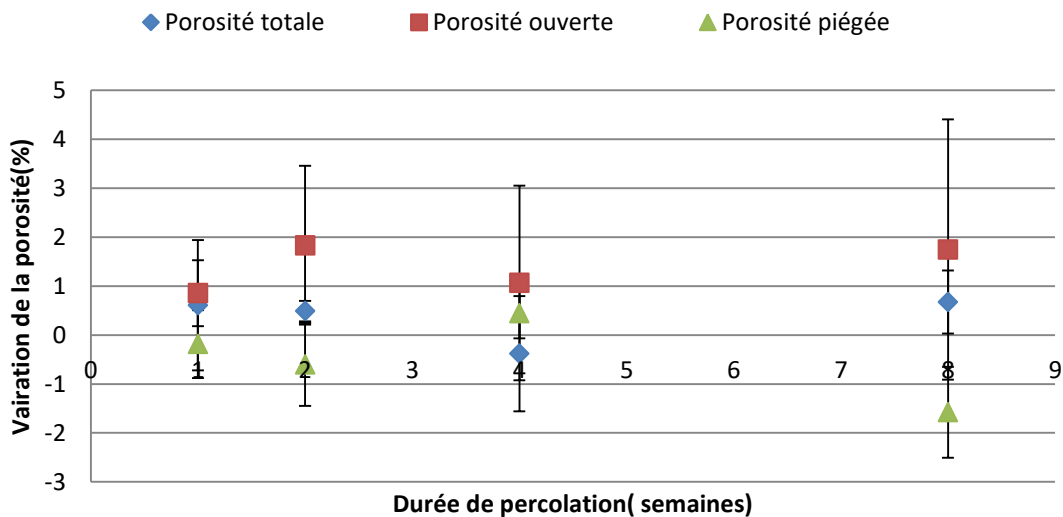


Figure 144 Évolution de la porosité à l'eau dans le gypse matriciel

Après un mois de percolation, la porosité mercure (Nhg) est homogène sur l'ensemble de l'éprouvette (15,1% à 18,7%) et de même ordre que la porosité à l'eau (15,6%). L'augmentation de la porosité à l'eau reste faible (Nt0= 15,1%). La nanoporosité ne diminue de manière significative que sur les sections 0-1, 3-4 et 4-5 cm. Ces sections présentent également des coefficients de dispersion (Cd) importants (supérieur à 40). La dissolution se traduit ici au niveau des diamètres moyens par le développement d'un pic à  $0,03 \mu\text{m}$  et l'élargissement du pic principal à des valeurs comprises entre 5 et  $7 \mu\text{m}$ .

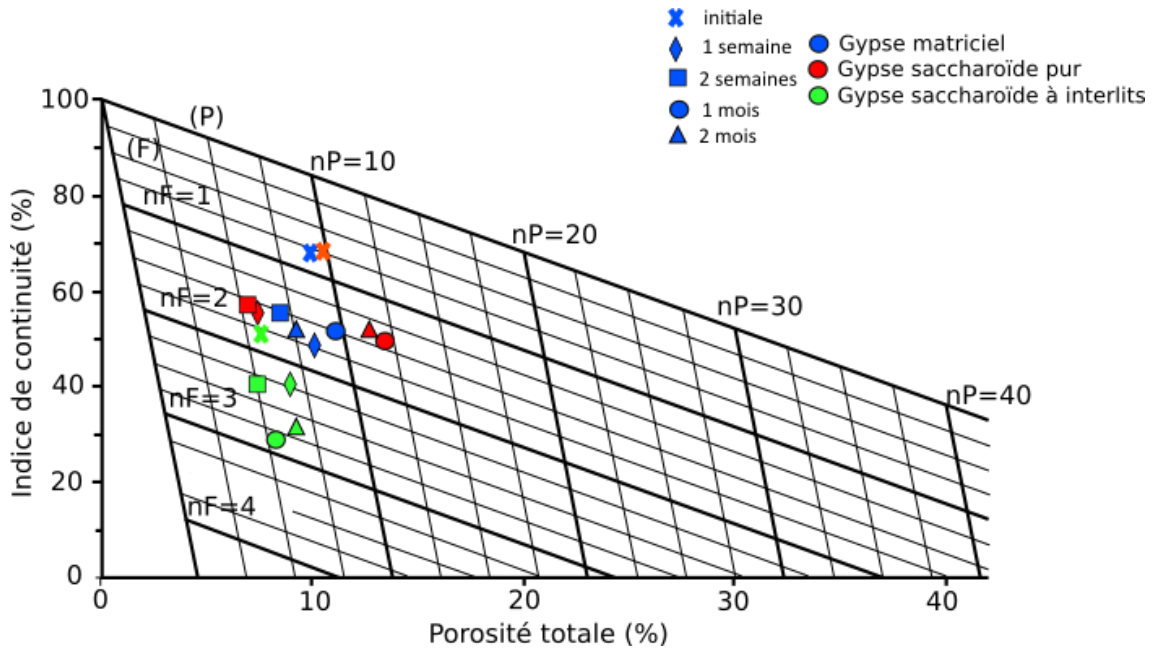


Figure 145 Évolution de la porosité porale (Npore) et fissurale (Nfiss) avec la percolation

Après 2 mois de percolation, la porosité est de 10,7% sur la section sommitale (4-6 cm) et de 13,5 à 16,7% sur les sections inférieures. Ces résultats sont concordants avec la porosité à l'eau de 13,2%. Cette évolution est marquée par le développement d'une porosité micrométrique structurée avec des pics entre 2 et 4  $\mu\text{m}$ . Le premier centimètre présente le développement d'une famille de pore autour de 45  $\mu\text{m}$  signe de la dissolution. Les proportions de la nano porosité sont peu affectées sur l'ensemble des sections mais son volume augmente ainsi que le développement du même pic apparu à un mois autour de 0,03  $\mu\text{m}$ . La microporosité (17,7%) diminue sur le premier centimètre au détriment de la macroporosité (37%). Les coefficients de dispersions sont ici hétérogènes avec des valeurs de la base vers le sommet de l'échantillon répartis comme suit 17,8 (0-1 cm), 34,4 (1-2 cm), 4,2 (2-3 cm), 22,0 (3-4 cm) et 34,2(4-6 cm).

**Le faciès matriciel présente une évolution lente de sa porosité avec peu de variation à 2 semaines. Après un mois de percolation, le diamètre des pores s'élargit de 0,8 à 6  $\mu\text{m}$ . La famille de pores la plus fine présente également une évolution avec une démarcation se développant entre un pic à 0,04 et celui présent initialement à 0,08  $\mu\text{m}$ . Sur le dernier pas de temps, cette évolution semble se confirmer. Ainsi l'ensemble de la porosité est concernée par la dissolution avec un élargissement de l'ensemble des familles de pores. La famille de pore principale se développant d'un facteur 10, ce qui permet de justifier la réduction de la porosité piégée avec la dissolution. Ces pores de dimensions supérieurs à 10  $\mu\text{m}$  devraient être visualisable en microscopie optique.**

La distinction entre porosité fissurale ( $N_{\text{fiss}}$ ) et porosité porale ( $N_{\text{pore}}$ ) montre une évolution avec l'augmentation de porosité mais sans modification de la porosité fissurale ( $N_{\text{fiss}}$ ), stable autour de 1,5% (Figure 145). Le gypse matriciel présente une diminution de l'indice de continuité ( $I_c$ ) de 4,5%. Après une semaine de percolation. Elle passe ensuite à des valeurs entre 7 et 8,6 % pour les mesures suivantes. La réduction d' $I_c$  est donc inférieure à 10% pour 2 mois de percolation et semble se stabiliser comme pour la vitesse du son après 2 semaines de percolation.

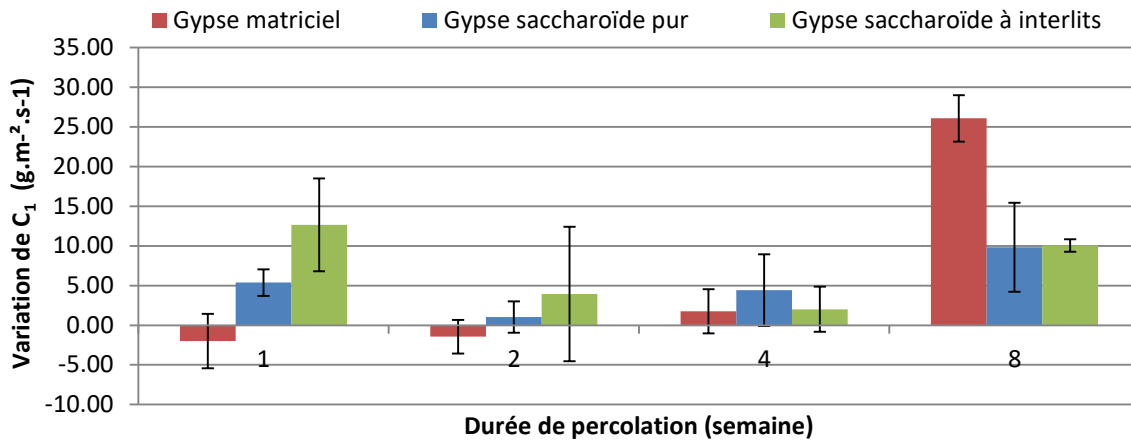
### CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

Le coefficient d'imbibition capillaire ( $C_1$ ) du gypse matriciel ne présente pas d'évolution significative lors du premier mois de percolation, ce qui est cohérent avec l'absence de modification de la porosité à l'eau précédemment décrite (Tableau 34).

**Tableau 34 Évolution du coefficient de capillarité ( $C_1$ ) avec la percolation. Var\* variation du coefficient  $C_1$**

	initiale	1 semaine		2 semaines		1 mois		2 mois	
	Valeur	Valeur	Var*	Valeur	Var*	Valeur	Var*	Valeur	Var*
Gypse matriciel	21,1 +/- 6,1	21,6 +/-2,4	-2,0	20,3 +/-4,7	-1,5	25,7 +/-7,2	+1,8	46,1 +/-0,4	+26,1

Après deux mois de percolation, le faciès matriciel présente une augmentation du coefficient d'imbibition de  $21,1 \text{ g.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$  (chap 3.1) à  $46,1 \text{ g.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ , soit une multiplication par 2 de sa valeur (Figure 146). Cette évolution est liée à l'augmentation de la porosité son élargissement. De plus, les mesures en porosimétrie mercure montre le développement d'une classe de pore à  $1 \mu\text{m}$  de diamètre et l'élargissement progressif de la famille de  $0,1 \mu\text{m}$  vers des diamètres d'environ  $5 \mu\text{m}$ . Cet élargissement des petits pores réduit l'effet capillaire et la vitesse d'ascension mais est compensée par la meilleure connectivité de la structure poreuse ce explique au final l'augmentation du coefficient  $C_1$ .



**Figure 146 Évolution du coefficient d'imbibition capillaire avec la percolation**

## CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

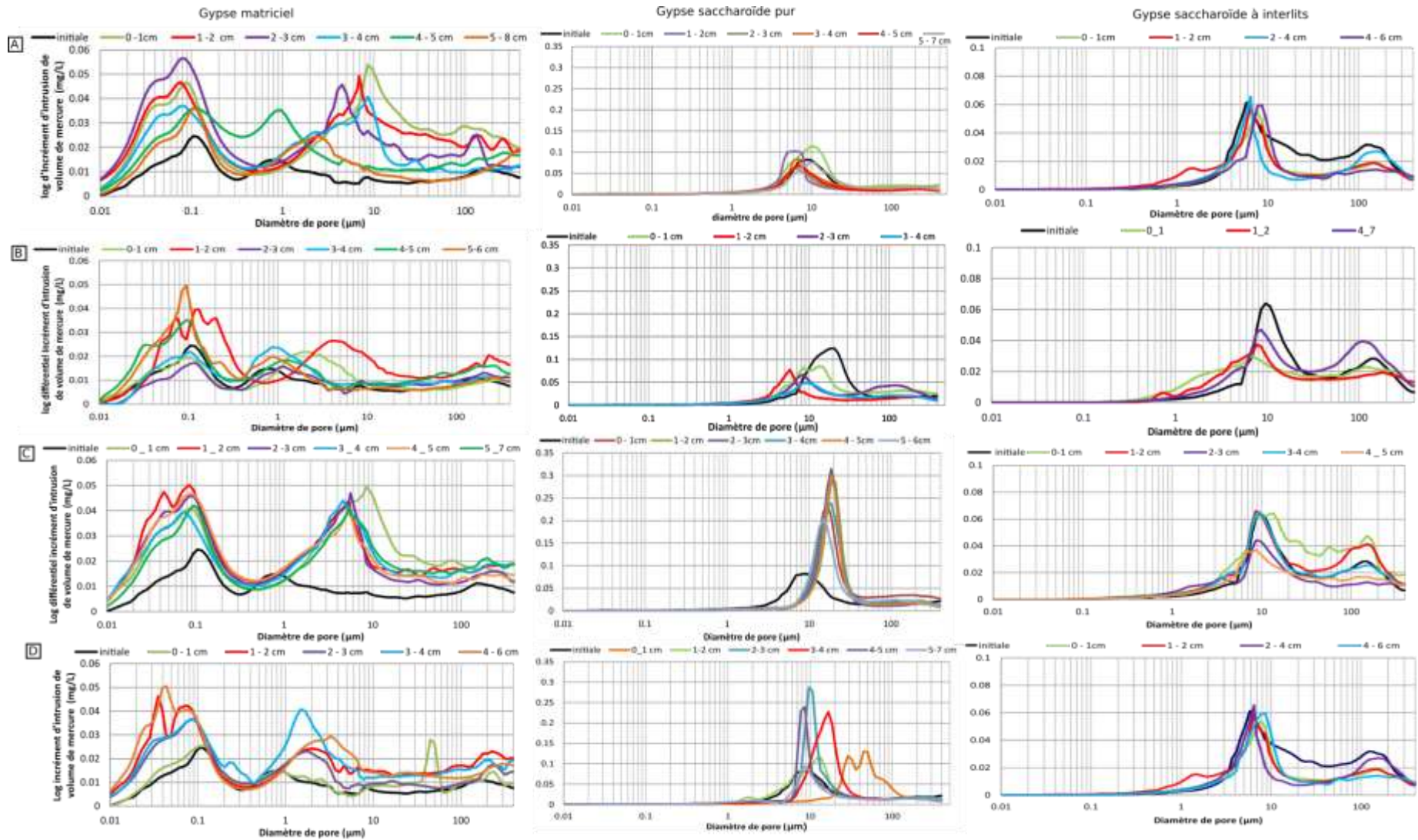


Figure 147 Évolution des diamètres moyens par porosimétrie d'intrusion de mercure des faciès de gypse altérés par percolation. A : 1 semaine ; B : 2 semaines ; C : 1 mois ; D : 2 mois

## CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

**Tableau 35 Évolution des porosités au cours de la percolation. \* la variation correspond à la différence entre la valeur moyenne post percolation des 3 éprouvettes testées en porosité et la valeur moyenne ce lot d'éprouvette à t = 0). \* La porosité mercure est déterminée à partir de la moyenne de l'ensemble des sections.**

	Durée de la percolation	Porosité Nt (%)		Porosité accessible N48 (%)		Porosité piégée (%)		Porosité Hg moyenne (%) *	
		valeur	Variation*	valeur	Variation*	Valeur	Variation*	Valeur	Variation*
Gypse saccharoïde pur	1 semaine	8,3 +/- 1,0	+0,4	5,2 +/- 0,1	+0,72	3,5 +/- 0,1	+0,1	10,17 +/- 2,3	-2,3
	2 semaines	8,1 +/- 0,5	+0,4	5,2 +/- 0,0	+0,4	3,3 +/- 0,0	+0,4	12,2 +/- 3,2	-0,23
	1 mois	14,6 +/- 4,2	+5,1	10,2 +/- 1,36	+3,7	3,5 +/- 0,4	+0,7	19,1 +/- 1,2	+6,68
	2 mois	13,2 +/- 2,9	+2,9	10,5 +/- 0,4	+2,8	3,25 +/- 0,1	-0,12	16,3 +/- 1,7	+3,38
Gypse matriciel	1 semaine	10,4 +/- 0,5	+0,8	10,2 +/- 0,1	+0,8	0,7 +/- 0,1	-0,4	17,4 % +/- 3	+8,0
	2 semaines	9,4 +/- 1,7	+0,6	9,1 +/- 0,0	+1,83	0,6 +/- 0,1	-0,4	11,5 +/- 2,5	+2,1
	1 mois	12,1 +/- 3,1	+0,1	10,6 +/- 0,1	+1,1	2,0 +/- 0,0	-0,4	16,8 +/- 1,3	+7,4
	2 mois	10,0 +/- 3,5	+0,7	10,3 +/- 0,05	+1,8	0,1 +/- 0,6	-1,6	15,6 +/- 2,5	+6,2
Gypse saccharoïde impur	1 semaine	9,0 +/- 2,8	+1,2	6,8 +/- 0,0	+1,2	1,9 +/- 0,5	-0,5	14,9 +/- 1,8	+3,94
	2 semaines	8,4 +/- 1,1	+1,4	6,0 +/- 0,2	+0,2	2,0 +/- 0,2	+0,5	11,3 +/- 1,7	+0,3
	1 mois	8,8 +/- 0,7	+1,6	7,1 +/- 0,1	+2,9	1,4 +/- 0,1	+0,1	12,8 +/- 3,2	+1,8
	2 mois	9,2 +/- 3,0	+1,6	6,9 +/- 0,4	+0,5	2,8 +/- 2,8	+1,7	8,65 +/- 0,5	-2,35

### **b) Évolution de la perméabilité**

La détermination de la perméabilité sur les faciès de gypse étudiés a été effectuée sur une cellule triaxiale et à nécessiter des investigations approfondies pour trouver les conditions d'expérimentations pertinentes (rupture avec le chargement latérale...). Cette validation tardive a conduit à effectuer un suivi sur 2 lots de 3 éprouvettes sur les gypses saccharoïdes pur et matriciel, le gypse saccharoïde à interlits ne présentant plus assez d'éprouvettes disponibles. Les 2 lots d'éprouvettes ont été soumis à subies une altération par percolation à 3 pas de mesures (2 semaines, 1 et 2 mois). Les éprouvettes ont été conservées pour l'ensemble des pas de mesures. Ces éprouvettes sont issues d'un réapprovisionnement en échantillon. Or la caractérisation initiale du faciès matriciel a révélé un volume de pore ( $N_t$ ) 6% contre 9% pour les éprouvettes testées en percolation et déjà décrite. Après 2 mois de percolation, la porosité de ces échantillons a augmenté de 1 à 2%, de manière similaire au premier lot de gypse matriciel testé (Tableau 36). L'évolution de la perméabilité est synthétisée dans la Figure 152

### CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

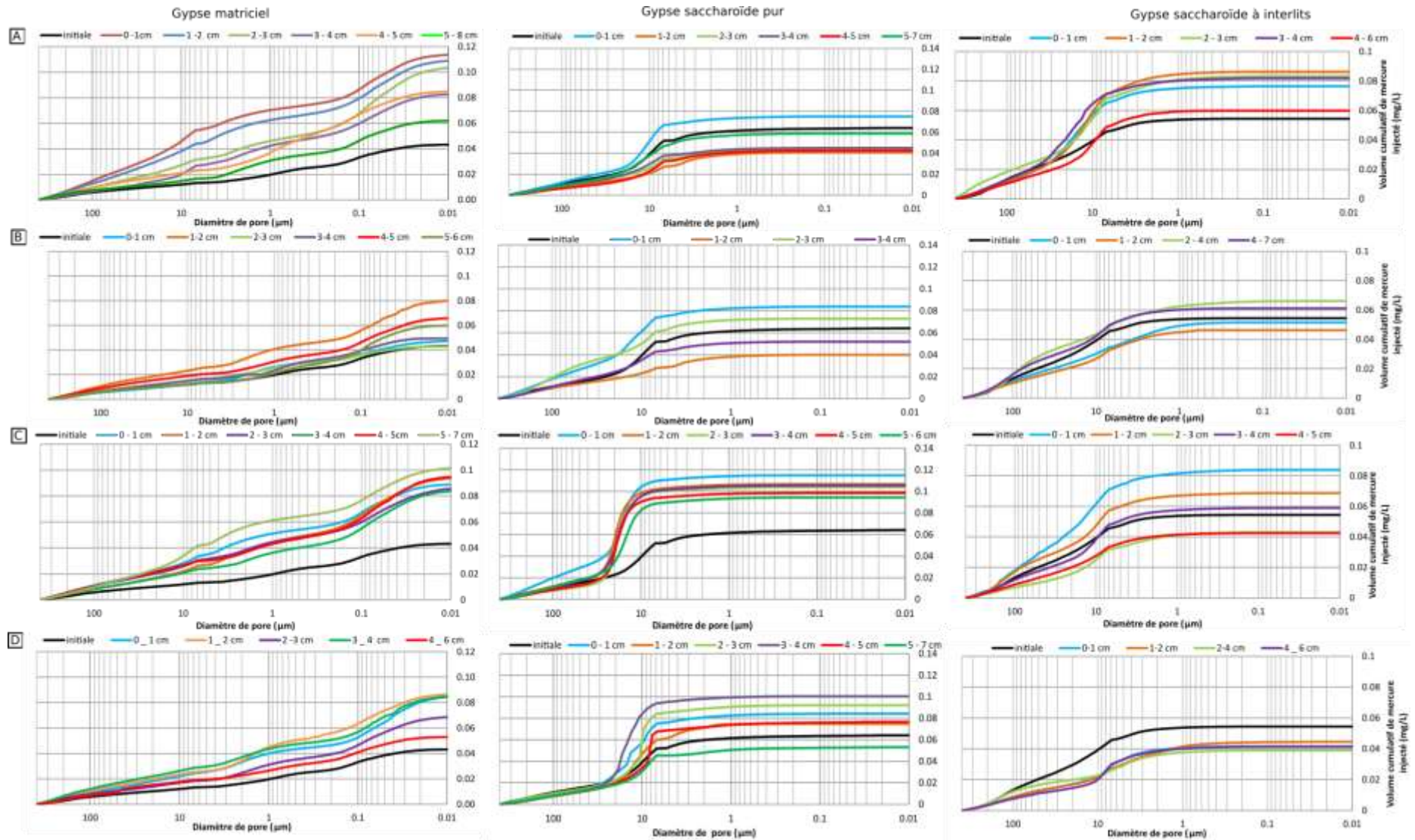


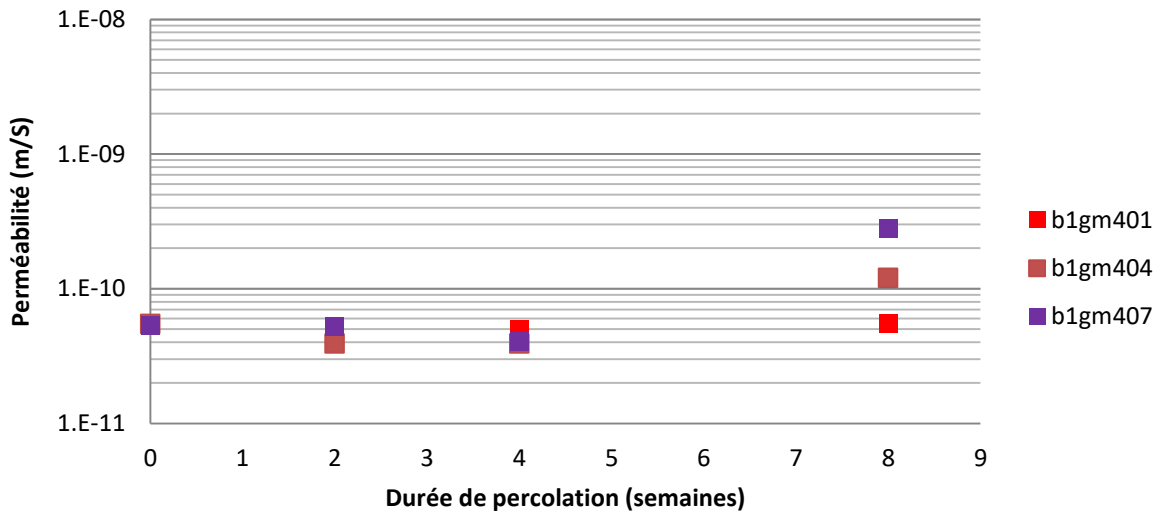
Figure 148 Évolution des courbes de mercure cumulées par porosimétrie d'intrusion de mercure des faciès de gypse altérés par percolation. A : 1 semaine ; B : 2 semaines ; C : 1 mois ; D : 2 mois

## CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

**Tableau 36 Évolution de la porosité des éprouvettes avec la percolation des éprouvettes de l'essai de perméabilité**

		Gypse matriciel		
		B1GM401	B1GM404	B1GM407
Porosité (Nt) %	initiale	6.4	6.1	5.5
	Après 2 mois	6.7	6.9	6.9
Perméabilité (m.sec <sup>-1</sup> )	initiale	5.5.e <sup>-11</sup>	5.5.e <sup>-11</sup>	5.3.e <sup>-11</sup>
	Après 2 mois	5.5.e <sup>-11</sup>	1.2.e <sup>-10</sup>	2.8.e <sup>-10</sup>

Le gypse matriciel ne présente pas d'évolution sur le premier mois d'essai avec des valeurs de l'ordre de 2 à 3.10<sup>-11</sup> m/s, semblant même diminuer. Après 2 mois de percolation, la conductivité hydraulique augmente de manière faible de 5.10<sup>-11</sup> m/s à 9.10<sup>-10</sup> m/s. Ces résultats sont concordants avec l'ensemble des descriptions effectuées jusqu'ici pour ce faciès



**Figure 149 Évolution de la perméabilité des gypses matriciels (GM) et saccharoïde pur (B2GS) pour différente durée de percolation.**

### c) Évolution pétrographique

La lame est réalisée à de l'éprouvette B1GM307 dans sa partie basale (entre 1 et 2cm par rapport à l'entrée d'eau). L'aspect général est similaire à celui précédemment décrit avec des cristaux de gypse subautomorphes à xénomorphes pris dans une matrice micro-gypseuse (Figure 150A et B). Ils présentent une forme allongée à bord arrondis. Certains cristaux de gypse sont même sphériques. La taille des cristaux est de 158 µm en moyenne soit bien inférieure à celle mesurée sur la lame initiale (400 µm). Cette réduction est attribuable pour partie à la dissolution mais également à une présence accrue d'éléments de plus faibles dimensions. Les mesures indiquent en effet un plus grand nombre d'éléments dans la portion 50 à 100 microns avec toujours une présence en quantité d'éléments entre 200 et 600 microns. Ainsi le tri apparaît plus faible ici que sur la lame précédente. Les éléments millimétriques décrits lors de la caractérisation sont également présents mais en plus faible quantité dans la lame.

L'analyse par traitement d'images comme à l'état initiale ne permet pas une distinction nette entre porosité et matrice (Figure 150C). L'estimation globale sans les discriminées donne une estimation de 52% pour l'ensemble de la lame, soit une augmentation de 12% par rapport à l'état initial (Tableau 37). Il est supposé homogène et représentatif les 2 lames dans leurs entières. La porosité apparaît ainsi toujours disséminée à travers la matrice pour l'essentielle. Il est a noté le développement de bande de porosité entre la matrice et les éléments granulaire (Figure 150D). Cette délimitation entre matrice et phase granulaire est le



### CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

signe d'une dissolution par régression de ces minéraux. Ces « fronts » ont une épaisseur d'une dizaine de microns environ. Pour partie, elles sont comblées par des éléments fins de couleurs noirs identifiables comme des argiles (Figure 150.E). Ponctuellement, la matrice apparaît moins présente et il est possible de distinguer nettement le bleu de la coloration indiquant la porosité, un phénomène de lessivage pourrait être à l'origine de cela.

Les traces d'altérations précédemment décrites à savoir des bords rongés et progressant le long des plans de clivage sont ici accentuées (Figure 150.G et H). Cette image en LPA montre bien la dégradation du minéral dont la polarisation est même affectée passant du gris au jaune sale dans les zones les plus dégradées. La présence de la calcite déjà identifiée dans la caractérisation est toujours présente avec des éléments de faibles dimensions (quelques microns) et s'identifie à sa teinte de polarisation dans le 3<sup>ème</sup> ordre. La calcite semble apparaître en plus grande quantité que lors de la caractérisation (Figure 150.F). Cela peut être expliqué par plusieurs hypothèses comme des phénomènes de précipitations liés à la sursaturation de l'eau de percolation ou lors du séchage, par le lessivage des éléments argileux de la matrice lors de la percolation permettant une meilleure observation de la calcite ou encore une migration depuis la partie inférieure de l'éprouvette de ces éléments. Comme lors de la caractérisation, les éléments quartzeux sont difficilement différenciables du gypse du fait de leurs propriétés optiques proches. L'analyse DRX en révèle une faible quantité qui s'observe ponctuellement par des extinctions tournantes en LPA.

**Tableau 37** Variation de la porosité mesurée au microscope optique entre la caractérisation initiale et après la percolation.

	Gypse matriciel	Gypse saccharoïde pur	Gypse saccharoïde à interlits
Porosité mesurée initialement (%)	40	15,0	6,0
Porosité mesurée post percolation (%)	52	18,0	26,0 avec digitation 13,0 sans digitation
Variation de la porosité	+ 12	+ 3,0	+ 7,0 à +20,0

### CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

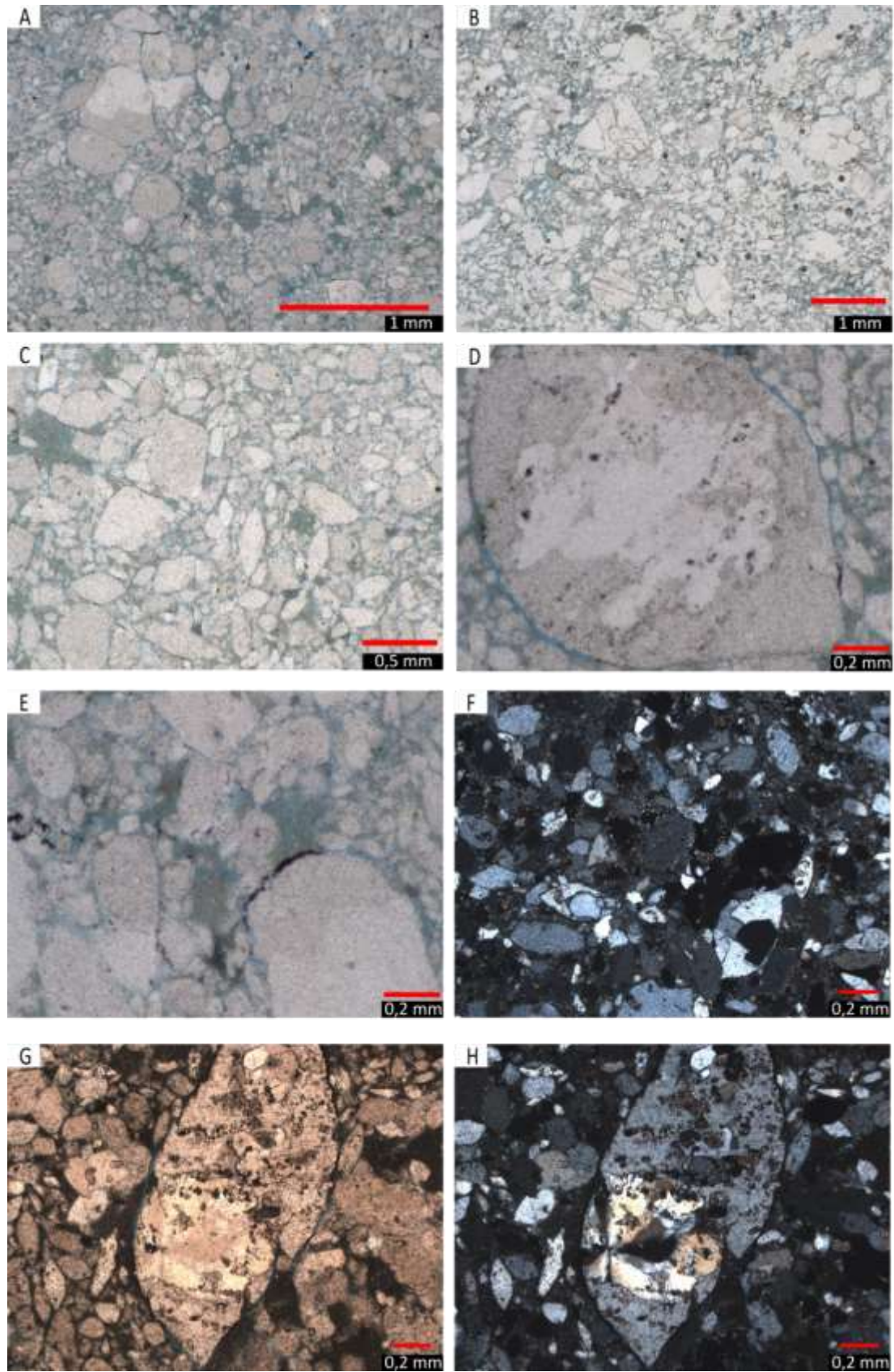


Figure 150 Photo microscopique Photos prises au microscope optique polarisant du gypse matriciel post percolation. A : vue générale de la lame post percolation à x50. B : vue générale initiale à 50. C : visualisation de la porosité à x100. D : dissolution régression à x100 formant une bande de porosité. E : dissolution régression à x100 formant une bande de porosité partiellement comblée par des argiles. F : observation de la calcite en LPA à x100. G et H : visualisation de l'altération d'un grain et de l'effet de la dissolution en LPNA et LPA à x100

## 2) Gypse saccharoïde pur

### a) Évolution de la porosité

Comme pour le gypse matriciel, l'évolution de la porosité n'est pas significative sur les 2 premières semaines d'essais (Tableau 35 et Figure 151). Sur les pas de temps à 1 et 2 mois de percolation, l'augmentation de la porosité totale est supérieure à 6% pour une large part du fait de la porosité karstique (Tableau 38). Il s'agit d'un phénomène de chemin préférentiel (ou whormhole) apparu sur une partie des éprouvettes en cours d'essais. Ces chemins préférentiels ne sont pas quantifiables par la mesure de la porosité à l'eau. Leurs volumes ont été déterminés après un sciage des éprouvettes en tranche d'1 cm d'épaisseur environ et le calcul du volume géométrique correspondant. Les volumes mesurés ont ensuite été additionnés et rapportés au volume total de l'éprouvette. La porosité totale présentée dans la figure ci-dessous est celle déterminée via la méthode de la triple pesée et n'a pas été modifiée en ajoutant la « porosité karstique ». Il est défini ici comme porosité karstique ( $N_{karst}$ ) le volume de vide formé par les chemins préférentiels.

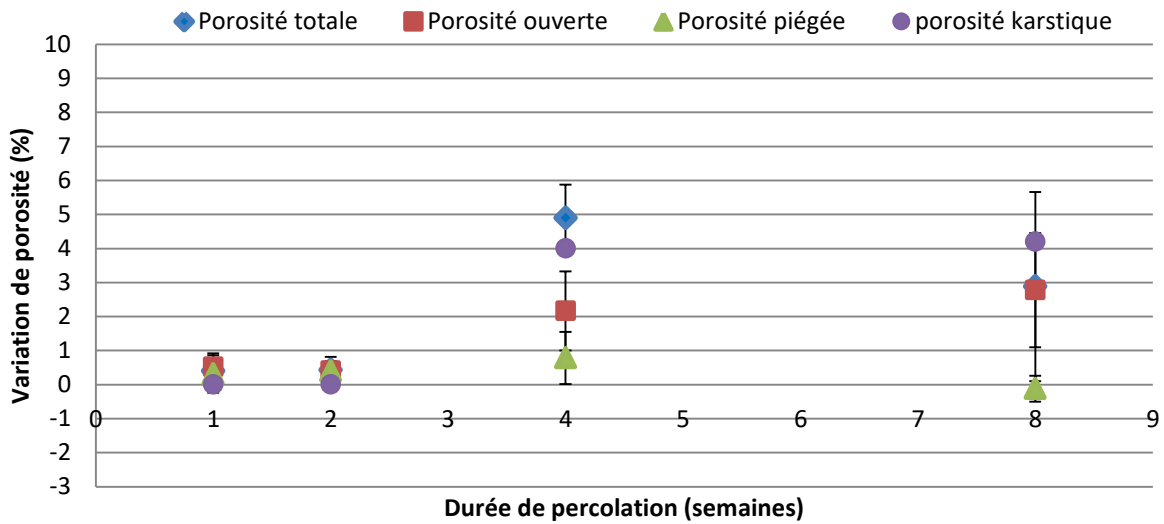


Figure 151 Évolution de la porosité à l'eau dans le saccharoïde pur avec la percolation

En parallèle de la formation de ces zones de vides, la porosité ouverte augmente de 2,2% après 1 mois et de 2,8% après 2 mois de percolation. Ces variations correspondent à l'augmentation des diamètres de pores. La porosité piégée correspond à la porosité générée soit par la rugosité porale soit par des phénomènes de « courts circuits ». Les essais de percolation étant réalisés en saturation totale, ce dernier phénomène apparaît toutefois peu probable.

Tableau 38 Estimation de la porosité développée par le phénomène de whormhole. Nb : la détermination n'a été effectuée que pour une éprouvette de gypse à interlits, d'où l'absence d'écart type.

		1 semaine	2 semaines	1 mois	2 mois
Gypse saccharoïde pur	moyenne (%)	///	////	4.1	3.9
	écart type			0.1	0.1

Les écarts types relevés pour les pas de temps à 1 et 2 mois sont de l'ordre de 2% soit la variabilité initiale entre les éprouvettes. Cela confirme la bonne représentativité de l'essai et que l'évolution des éprouvettes suit une même tendance que la porosimétrie par intrusion de mercure peut compléter.

### CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

Après une semaine de percolation, la porosité mercure montre une augmentation sur le premier centimètre (14,2%), signe de la mise en place de la dissolution. Elle se traduit par une augmentation du diamètre moyen de 7 à 10  $\mu\text{m}$ . Le reste des mesures est homogène en termes de porosité et de diamètre de pore et sans évolution notable. Le coefficient de dispersion et la répartition de la porosité (macro, micro, nanoporosité) ne montrent pas d'évolution sur l'ensemble de l'éprouvette.

Après deux semaines, le premier centimètre est toujours celui présentant une évolution marquée par la dissolution. La porosité atteint 15,6% et le diamètre moyen atteint les 15  $\mu\text{m}$ . Le reste de l'éprouvette apparaissant peu impacté avec un diamètre moyen de 8  $\mu\text{m}$ . Le coefficient de dispersion et la répartition de la porosité est également proche de la caractérisation et équivalent entre les sections.

Après un mois de percolation, la porosité mercure augmente sur l'ensemble des sections étudiées. Le premier centimètre est le plus affecté avec une porosité de 21,2%, cette porosité diminue suivant un gradient jusqu'à la section sommitale avec une porosité de 17,6%. Cette augmentation de porosité se traduit par une augmentation de la proportion de macroporosité et des diamètres moyens de 18 à 20  $\mu\text{m}$  (la section sommitale est à 13  $\mu\text{m}$ ). Les chemins préférentiels développés par cette éprouvette n'ont pu être quantifiés par la méthode PIM ( $> 400 \mu\text{m}^\circ$ ). Les coefficients de dispersions ne présentent pas d'évolution.

Après 2 mois de percolations, la porosité mesurée est comprise entre 14 et 18,6% sur les 5 premiers centimètres de l'éprouvette, la dernière section (5 à 7cm) possède une porosité au mercure de l'ordre de 10%. Le premier centimètre est fortement impacté par la dissolution, le réseau devant être bimodal avec des familles de pores à 30 et 58  $\mu\text{m}$  et le coefficient de dispersion atteignant 16,8. Pour les points suivants, l'augmentation de la porosité est principalement micro porale (de 50 à 60% du volume de mercure) et des diamètres de pore compris en 10 et 20  $\mu\text{m}$ . Les coefficients de dispersions sont inférieurs à 1, ce qui traduit un réseau unimodal.

**Le suivi PIM du gypse saccharoïde pur montre une évolution progressive du diamètre de pore de 10 vers 20  $\mu\text{m}$  pendant le premier mois d'essai. Au-delà, le développement des chemins préférentiels produit des dimensions trop importantes ( $>400 \mu\text{m}$ ) pour être quantifiable par la méthode. Il est notable toutefois que la base de l'éprouvette à 2 mois qui présente des familles de pores supérieures à 100  $\mu\text{m}$  bien développée. Il est ainsi possible de supposer qu'au-delà de quelques dizaines de microns, les capillaires dans le gypse dégénèrent rapidement en conduit de chemin préférentiel.**

Le gypse saccharoïde pur présente une réduction de 10% de son indice de continuité dès la première semaine de percolation et se stabilise autour de cette valeur à  $\pm 2\%$  sur les pas de temps suivants (Figure 145). Ceci montre bien l'évolution rapide du matériau. Ensuite une perte de représentativité de l'essai avec le développement des chemins préférentiels vient diminuer le contact entre les capteurs et l'éprouvette. La répartition de la porosité montre quant à elle une absence d'évolution de la porosité sur les 2 premières semaines d'essais, cohérent avec la non évolution de la porosité totale. Sur les points suivants, l'augmentation de la porosité est attribuée au développement des pores existants et non au développement de fissures. Ce qui renforce l'hypothèse d'un élargissement des capillaires et des pores existants.

Le gypse saccharoïde pur apparaît comme peu sensible à l'évolution de son coefficient capillaire (Figure 146 et Tableau 39). Après 1 ou 2 semaines de percolation, il y a peu d'évolution de la cinétique d'imbibition, ce qui est cohérent avec le peu d'évolution de la porosité et des familles de pores en porosimétrie à l'eau et au mercure. Les pas de temps mensuel présentent des valeurs de mêmes ordres que les mesures hebdomadaires. Le

## CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

développement des chemins préférentiels fausse cette mesure, notamment via la réduction de la surface de contact par laquelle l'eau peut pénétrer devenant non représentative.

**Tableau 39** Évolution du coefficient de capillarité ( $C_1$ ) du gypse saccharoïde pur avec la percolation. Var\* variation du coefficient  $C_1$

	1 semaine		2 semaines		1 mois		2 mois	
	Valeur	Var*	Valeur	Var*	Valeur	Var*	Valeur	Var*
Gypse saccharoïde pur	13,2 +/-3,1	+5,4	13,6 +/-5,4	+1,0	106,7 +/-42	-1,9	83,9+/-17	+9,8

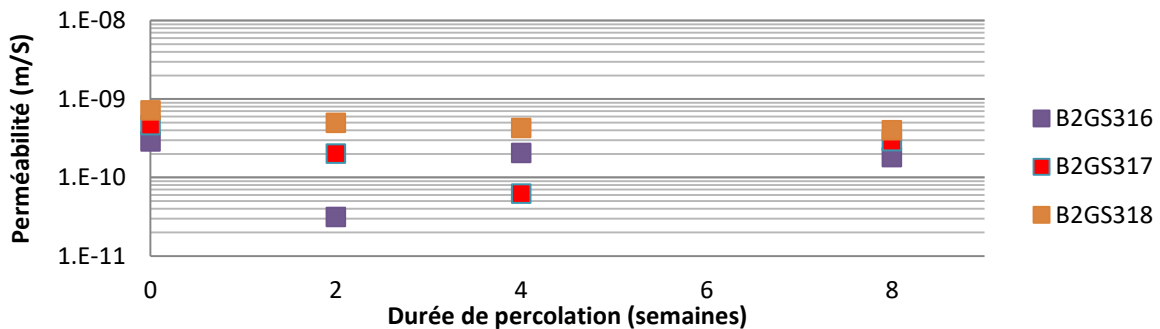
### b) Évolution de la perméabilité

Comme pour le gypse matriciel, les éprouvettes utilisées pour suivre l'évolution de la perméabilité du gypse saccharoïde pur sont issues d'un réapprovisionnement du fait de l'arrivée tardive de cet essai dans le programme expérimental. Les éprouvettes sont conservées pour chaque pas de temps avec des arrêts de l'essai de percolation à 2 semaines, 1 et 2 mois pour mesurer la perméabilité. La caractérisation initiale du faciès saccharoïde pur a révélé un volume de pore différent soit une porosité totale ( $N_t$ ) de l'ordre de 2 à 3% contre 10% pour les éprouvettes testées en percolation et déjà décrite. Après 2 mois de percolation, la porosité de ces échantillons a augmenté de 1 à 2% (Tableau 40). La faible porosité initiale a limité les effets de la dissolution et la formation d'un gradient d'altération.

**Tableau 40** Évolution de la porosité des éprouvettes de gypse saccharoïde pur avec la percolation

		B2GS316	B2GS317	B2GS318
Porosité ( $N_t$ ) %	initiale	2.6	1.9	2.5
	Après 2 mois	3.4	3.0	3.0
Perméabilité ( $m \cdot sec^{-1}$ )	initiale	$2.9 \cdot e^{-10}$	$4.6 \cdot e^{-10}$	$7.1 \cdot e^{-10}$
	Après 2 mois	$1.8 \cdot e^{-10}$	$2.9 \cdot e^{-10}$	$4.0 \cdot e^{-10}$

Si aucune lame mince n'a été réalisée pour visualiser si la texture était similaire, un essai de porosimétrie mercure a permis d'établir une même dominance d'un diamètre d'accès autour de 8 à 10  $\mu m$  avec la présence d'une macroporosité mais en plus faible quantité que pour le premier lot d'éprouvettes testées en percolation. Ainsi la porosité semble similaire mais elle occupe un volume moindre. L'évolution de la perméabilité est synthétisée dans la Figure 152. Le gypse saccharoïde pur quant à lui est constant sur l'ensemble de la période testée avec des perméabilités de l'ordre de  $10^{-10}$  m/s, voire légèrement diminué. La faible porosité limite fortement le volume d'eau pouvant pénétrer et dissoudre l'échantillon. Ce qui favorise une régression de surface plutôt que la formation d'un gradient. Le premier lot de ce faciès a formé des chemins préférentiels qui ne sont pas apparus ici.



**Figure 152** Évolution de la perméabilité des gypses matriciels (GM) et saccharoïde pur (B2GS) pour différente durée de percolation.

### c) Évolution pétrographique

Le suivi PIM du gypse saccharoïde pur montre une évolution progressive du diamètre de pore de 10 vers 20  $\mu\text{m}$  pendant le premier mois d'essai. Au-delà, le développement des chemins préférentiels produit des dimensions trop importantes pour que la méthode permette de les suivre. Il est notable toutefois que la base de l'éprouvette à 2 mois qui présente des familles de pores supérieurs à 100  $\mu\text{m}$  bien développée. Il est ainsi possible de supposer qu'au-delà de quelques dizaines de microns, les capillaires dans le gypse dégénèrent rapidement en conduit de chemin préférentiel.

La lame réalisée après percolation a été faite sur l'éprouvette B2GS358 entre 1 et 2 cm de hauteur par rapport à l'entrée d'eau. Cet échantillon a montré la trace de chemins préférentiels. Les minéraux sont de formes subautomorphes à xénomorphes ce dernier étant néanmoins dominant. Les bords de la presque totalité des grains sont marqués par la dissolution et nettement altérés, avec un aspect rongés et des bordures difficilement discernables (Figure 153A, B et C). Les surfaces apparaissent également agressées et non pas seulement au niveau des plans de clivages. De plus de nombreux amas de minéraux micrométriques sombres, des argiles et des oxydes sont disséminés (Figure 153.D).

Ces altérations se retrouvent dans les dimensions des cristaux de gypse avec un diamètre moyen de 268  $\mu\text{m}$  et des diamètres compris de 150 à 400  $\mu\text{m}$ . Pour rappel, lors de la caractérisation initiale, les éléments mesurés avait un diamètre de 200 à 400  $\mu\text{m}$  et quelques éléments grossiers (atteignant 800  $\mu\text{m}$ ). Le passage en lumière polarisée analysée permet de mettre en évidence des grains de calcite (Figure 153E). Ces éléments sont présents sur les bordures altérés des grains de gypse. Les grains de calcite sont de l'ordre de quelques micromètres et ne sont pas observables ailleurs que sur les bordures altérés.

Les grains sont toujours jointifs par contact sans phase de liaison observable. Localement une phase de liaison micrométrique est observable et correspond à des produits de dissolution micro granulaire (Figure 153F). Ainsi la porosité apparait comme intergranulaire, bien connectée et accessible dans sa globalité (Figure 153 G). L'estimation par traitement d'images donne des résultats homogènes autour de 18% de porosité de la surface de la lame (Tableau 37 et Figure 153H) Lors de la phase initiale, cette même méthode indiquait une estimation de l'ordre de 15% de la surface. La porosité présente donc une légère augmentation ce qui est cohérent pour une surface équivalente avec la réduction des éléments granulaires. Il est à préciser que la surface couverte par les argiles n'a pas été prise en compte dans la porosité bien qu'il s'agisse de produit d'altération micrométrique se positionnant dans la porosité. De même la porosité due au chemin préférentiel n'a pas été prise en compte et n'a pu être estimée sur cet échantillon.

### CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

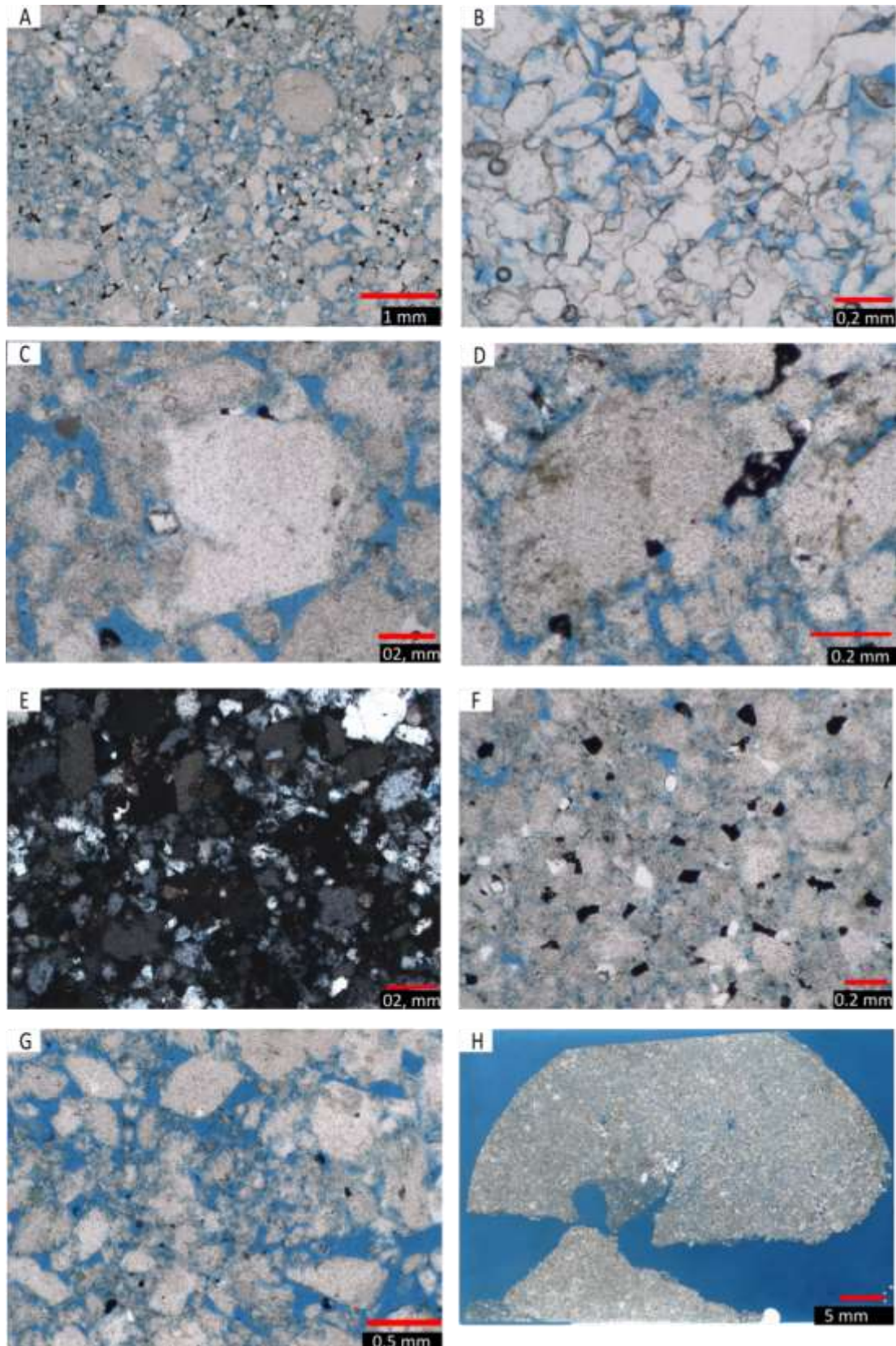


Figure 153 Photo microscopique du gypse saccharoïde pur post percolation. A : vue générale de la lame mince post percolation à x50. B : Bordure saine des grains initialement à x200. C bord des grains altérés à x200. D : Visualisation des argiles issues de la dégradation du matériau à x200. E : Visualisation de la calcite à x100. F : Visualisation des éléments micrométriques produits par la dégradation du gypse x 200. G : visualisation de la porosité x100. G : vue générale de la lame et du chemin préférentiel x20.

### 3) Gypse saccharoïde à interlits

#### a) Évolution de la porosité

Contrairement au gypse saccharoïde pur, des chemins préférentiels sont apparus dès la première semaine d'essai sur une partie des gypses testés. Cette évolution est devenue systématique dès le pas de temps à 2 semaines. Ces chemins canalisent une large partie du flux hydraulique et a ainsi limité l'évolution de la structure interne des éprouvettes. L'augmentation de débit résultant de ces chemins a également complexifié la possibilité de maintenir l'expérimentation sur les pas temps à 1 et 2 mois. Ainsi seules deux éprouvettes ont pu atteindre la durée de 2 mois de percolation, d'où l'important écart type présenté en avec 1,57% pour la porosité totale (Tableau 35 et Figure 154).

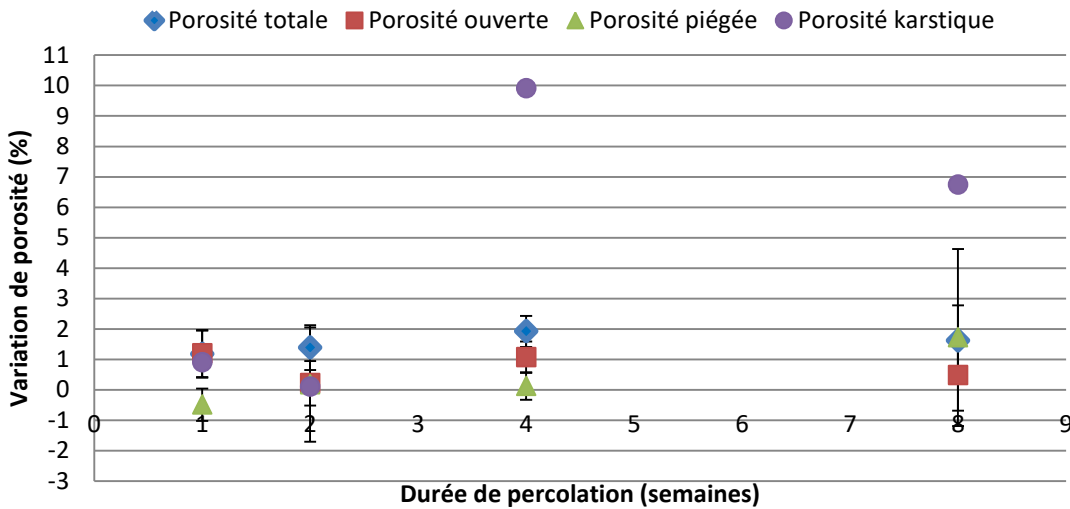


Figure 154 Évolution de la porosité du gypse saccharoïde à interlits

La porosité karstique apparaît comme relativement faible sur les deux premiers pas de temps considérés. Il s'agit d'un conduit de l'ordre du millimètre de diamètre traversant l'éprouvette. Sur les pas de temps mensuels, ce dernier s'élargit ensuite jusqu'à former des conduits centimétriques au centre des éprouvettes avec des géométries sinuosités. Cette porosité peut atteindre 10% du volume de l'éprouvette (Tableau 41). Les ramifications restent peu nombreuses. La réduction de la porosité entre le pas de temps 1 et 2 mois peut s'expliquer par l'évolution du débit de percolation qui augmente avec l'apparition du conduit avant de se stabiliser et de diminuer pour certains échantillons. Cette dynamique s'explique par l'arrachement des minéraux moins solubles et plus fins que le gypse (argiles, oxydes de fer...). Ces éléments sont ensuite freinés à la sortie du dispositif par le filtre et la pierre poreuse. Leur accumulation génère un « bouchon » qui limite le débit.

Tableau 41 Estimation de la porosité développée par le phénomène de whormhole. Nb : la détermination n'a été effectuée que pour une éprouvette de gypse à interlits, d'où l'absence d'écart type.

		1 semaine	2 semaines	1 mois	2 mois
Gypse saccharoïde à interlits	moyenne (%)	0.9	0.1	9.9	6.7

L'évolution du gypse saccharoïde à interlits est similaire à celle du gypse saccharoïde pur pour la porosité à l'eau. Elle a une évolution faible sur l'ensemble de la période d'essai. L'augmentation de porosité à l'eau est inférieure à 2% avec des écarts types inférieurs à 1% sur le premier mois d'essais. Les porosités ouverte et piégée suivent la même allure avec des augmentations faibles (<2%). La porosimétrie par intrusion de mercure devrait donc montrer une évolution similaire.



Après une semaine de percolation, la porosité mercure augmente de +4% sur les 4 premières sections analysées avec une porosité de 15,8%. Ce faciès évolue ainsi plus rapidement que les deux autres faciès qui ne sont affectés que sur le premier centimètre à la même durée de percolation. La distribution des diamètres de pores présentent une allure bimodale avec un pic principal entre 10 et 100  $\mu\text{m}$  (Figure 147 et Figure 148). La macroporosité ( $> 15 \mu\text{m}$ ) est présente mais moins structurée que lors de la caractérisation, du fait du développement des chemins préférentiels. Les coefficients de dispersion sont de 2 pour l'ensemble des mesures.

Après deux semaines de percolation, la porosité de l'éprouvette testée ne révèle pas d'évolution en porosimétrie mercure (GST18). La porosité à l'eau ( $N_t$ ) n'évolue que faiblement également avec 0,8% d'augmentation. Cette éprouvette a développée rapidement un chemin préférentiel non détectable par la porosimétrie au mercure qui a canalisé une large partie de l'eau de percolation comme décrits dans les parties précédentes. Cela peut expliquer la faible évolution quantifier part les 2 méthodes de porosimétrie. La distribution des diamètres de pores apparait comme bimodale avec un pic à 10  $\mu\text{m}$  et une seconde famille de macropore à 100  $\mu\text{m}$  (Figure 147 et Figure 148). Ainsi la mise en place précoce du conduit préférentiel semble avoir canalisé l'ensemble de l'écoulement et bloquer la dissolution dans l'éprouvette.

Après un mois de percolation, la dissolution a fortement altéré le premier centimètre de l'éprouvette avec 16,7%. Les sections suivantes semblent développées un gradient d'altérations avec des valeurs de 11,8 à 8,8% pour la section sommitale (dans le même temps  $N_t$  passe de 7,1 à 9,6%). Les diamètres moyens de pore ne montrent pas d'évolution avec toujours une structure bimodale développée autour d'un pic à 10  $\mu\text{m}$  et d'un pic à 150  $\mu\text{m}$ . La répartition de la porosité apparait également peut modifier par la percolation. De même que les coefficients de dispersions compris entre 2,9 et 3,6 contre 2,3 à la caractérisation.

Après 2 mois de percolation, l'éprouvette ne présente pas d'évolution significative de la porosité, les valeurs étant de même ordre de grandeur de 8 à 9,3%. Cette absence d'évolution est cohérente avec la porosité totale ( $N_t$ ) également peu évolué, de l'ordre de 1%.

La formation précoce d'un chemin préférentiel (à 180 heures d'essais) a canalisé l'essentiel de l'écoulement empêchant l'évolution de la masse de gypse. La distribution des tailles de pores ne présentent également pas d'évolution remarquable. De même que les coefficients de dispersions allant de 2 à 3.

**Parmi les mesures de porosimétrie mercure réalisées sur le gypse saccharoïde à interlits seule l'éprouvette à 1 mois présente une évolution significative de la porosité. Le développement rapide des chemins préférentiels dans ce faciès semble inhibé pour la plupart des éprouvettes testées.**

**Le gypse saccharoïde à interlits** voit son  $I_c$  diminuer dès le premier pas de temps à -7% et -5% après 2 semaines. Les pas de temps mensuels voient le passage d'un palier avec des réductions supérieures à 10%. Le pas de temps à 2 mois est peu représentatif du fait qu'il n'est mesuré que sur 2 éprouvettes avec un fort écart-type. La distribution de la porosité montre une augmentation de la porosité porale et une porosité de fissure qui n'évolue pas. L'augmentation de la porosité porale est comprise entre 0 et 2% pour l'ensemble des pas de temps sans réelle tendance entre les mesures. Ces variations de porosité faible, au regard de la réduction de  $I_c$  pour les deux derniers pas de temps, est un indice supplémentaire quant à une interaction des chemins préférentiels avec la vitesse du son.

Le gypse à interlits présente une évolution du coefficient d'imbibition capillaire avec d'importants écart-types, signe d'une forte hétérogénéité dans l'évolution des éprouvettes. Dès la première semaine de percolation, un chemin préférentiel se développe dans les 3

## CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

épreuves testées. L'évolution du coefficient C1 reste cependant faible avec des valeurs de l'ordre de 10 g.m<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> (Figure 146 et Tableau 42). Comme pour le gypse saccharoïde pur, le développement de macro conduits perturbent l'évolution de la porosité et affecte la surface de contact avec l'eau ce qui contribue à réduire la représentativité de l'essai. Le développement des chemins préférentiels en canalisant l'écoulement contribue également à « figer » l'évolution du reste de la masse de gypse, d'où l'absence d'évolution entre le premier et le dernier pas de mesure.

**Tableau 42 Évolution du coefficient de capillarité (C<sub>1</sub>) du gypse saccharoïde à interlits avec la percolation. Var\* variation du coefficient C<sub>1</sub>**

	1 semaine		2 semaines		1 mois		2 mois	
	Valeur	Var*	Valeur	Var*	Valeur	Var*	Valeur	Var*
Gypse saccharoïde à interlits	70,0 +/- 1,9	+12,7	41,1+/-12,9	+3,9	50,5+/-10,7	+2,0	59,5+/-2,7	+10,1

### **b) Évolution pétrographique**

La lame mince a été réalisée à partir de la section 0-2 cm de l'éprouvette GST 30, qui a présenté, en cours d'essai, des chemins préférentiels importants (Figure 155.A). Lors de la description initiale de ce faciès, il a été signalé une démarcation nette entre les zones gypseuses et argileuses plus sombres (Figure 155.B). Sur cette lame mince post percolation, cette observation est toujours valable mais des amas argileux sont également disséminés au sein des zones qui se constituaient exclusivement de gypse initialement. Les éléments sont jointifs par faces.

Les grains de gypse observés sont de formes subautomorphes à xénomorphes, une partie des cristaux subautomorphes présente un clivage net (plan cristallographique 101) Ces éléments semblent mieux préservés que les autres éléments de gypse (plan cristallographique 010) (Figure 155.C). Ces derniers sont les plus présents en quantité sur la lame mince. Ils présentent de nombreuses traces d'altérations avec des bords rognés sur une ou plusieurs faces et se développent suivant les plans de clivages. (Figure 155.D). Comme pour les autres lames minces, des grains de quelques micromètres cristallisant dans les teintes du 3<sup>ème</sup> ordre (calcite) sont présents dans les zones altérés mais aussi dans les zones argileuses (Figure 155.E). Les cristaux ont une taille moyenne de 276 µm avec des éléments de 100 à 600 µm pour un écart type de 126 µm. Lors de la caractérisation initiale, les dimensions obtenues était similaire avec 253 µm de diamètre moyen et le même spectre granulométrique. Seul l'écart type un peu plus important de 148 µm, peut laisser supposer une régression de la taille des grains. Cette différence d'écart type reste faible.

La porosité est répartie de manière hétérogène sur la surface de la lame mince. Comme à l'état initial, elle se concentre principalement dans les zones argilo-ferrugineuses (Figure 155..F). La porosité apparaît comme plus développée dans ces amas qu'à l'état initial par le lessivage de ces éléments. Les minéraux lessivés ont été récupérés en quantité lors de l'essai de percolation comme insolubles (voir ci-avant). L'analyse par traitement d'images donne ainsi des estimations ponctuelles de 2 à 15% de la surface en porosité, ce qui confirme l'impression d'hétérogénéité dans la distribution des pores (Tableau 37). À l'échelle de lame mince, l'estimation est de 13% de porosité et 26% si l'on prend en compte les digitations (Figure 155G). Dans les minéraux annexes, il a pu être observé quelques cristaux de célestine se présentant une forme xénomorphe avec de nombreuses traces d'altérations mais sont nettement distinguables de par leurs teintes jaunâtres (Figure 155.H). En LPA, ils polarisent vers la de fin du premier ordre (jaunâtre) et s'éteignent à un angle de 51°. Des grains de quartz ont également pu être observés en faible quantités. Il n'a pas en revanche été visualisé de phlogopite, de tourmaline ou de zircon.

### CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

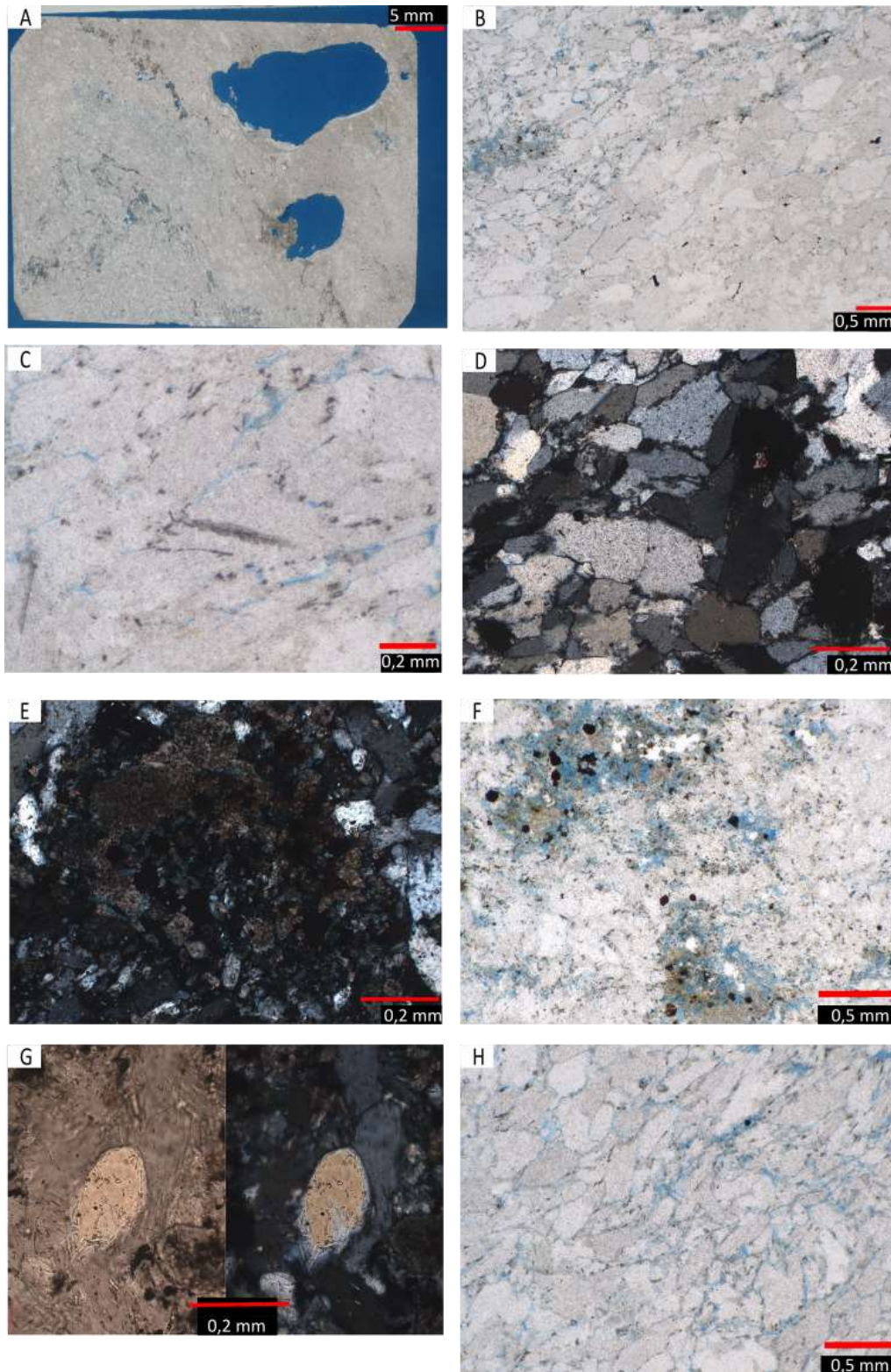


Figure 155 Photo microscopique du gypse saccharoïde pur post percolation. A : Visualisation de la lame et des digitations à x20. B vue générale de la lame post percolation à x50. C Visualisation des plans de clivage du gypse altéré à x200. D : micro grains de calcite dans les zones argileuses à x100. E : Observation de l'altération et de la présence de calcite dans des grains de gypse en LPA x100. G : Observation de la porosité intergranulaire dans les zones gypseuses. G : visualisation en LPNA et LPA d'un grain de célestine x200. H : Observation de la porosité dans les zones argileuses x100

**Synthèse :** l'évolution de la porosité totale ( $N_t$ ) révèle un effet quantifiable de la dissolution à partir d'un mois de percolation. L'évolution de la porosité reste faible avec +1% pour le gypse matriciel et +2% pour les gypses saccharoïdes en fin d'essai. La porosité totale augmente principalement par une augmentation de la porosité accessible ( $N_{48}$ ). La porosité piégée ( $N_p$ ) est constante pour les faciès saccharoïdes et tend à se réduire dans le faciès matriciel. Cette réduction peut s'expliquer par un élargissement des conduits hydrauliques diminuant le phénomène de « court circuits » (Bousquie, 1979; Tomachot, 2002; Mertz, 1991). Cette porosité ne tient pas compte du développement de chemins préférentiels pour les gypses saccharoïdes. Le faciès saccharoïde pur développe ces conduits entre 2 et 4 semaines de percolation avec une porosité de l'ordre de 4% de porosité sur le volume de l'éprouvette. Cette estimation reste constante entre 1 et 2 mois d'essai. Ainsi le chemin préférentiel semble stabiliser la dissolution. Dans le cas du faciès à interlits, le développement des digitations s'initie dès la première semaine de percolation avec d'abord un conduit de faible dimension puis s'élargit avec l'allongement de la durée d'essai. L'analyse par microscopie optique montre dans le cas du gypse matriciel, la porosité évolue par régression des grains les plus grossiers, formant une ligne de porosité pouvant se combler par des éléments argileux. La matrice évolue également avec une porosité plus facilement visualisable signe de la dissolution d'une partie des micros grains de gypse. Les deux faciès saccharoïdes révèlent quant à eux une porosité plus importante que lors de l'état initial.

Le suivi de l'évolution des dimensions de la porosité en fonction du temps et de la hauteur dans l'éprouvette montre des résultats mitigés. Le gypse saccharoïde à interlits présente peu d'évolution probablement du fait des chemins préférentiels canalisant l'ensemble de l'écoulement et freinant la dissolution dans le reste de l'éprouvette. Le faciès saccharoïde pur évolue par une augmentation de 10 à 20  $\mu\text{m}$  pendant le premier mois puis semble s'accélérer. En base d'éprouvette, le développement au-delà de 20  $\mu\text{m}$  évolue rapidement jusqu'à former des digitations. Enfin le faciès matriciel présente un élargissement progressif de sa porosité et ce pour les 2 familles de pores décrites. Ces résultats confirment l'idée développée à partir des résultats de porosité à l'eau à savoir que le développement des chemins préférentiels inhibe ou au moins ralentit la dissolution dans le reste de la masse de gypse. De plus le gypse saccharoïde semble évoluer rapidement une fois que les pores atteignent une dimension de 20  $\mu\text{m}$  de diamètre. Ce diamètre peut être considéré comme un seuil.

La répartition entre porosité porale ( $N_{\text{pore}}$ ) et fissurale ( $N_{\text{fiss}}$ ) ne présente pas de variation importante pour le faciès matriciel, à l'image de la porosité totale ( $N_t$ ) de ce faciès. Pour les faciès saccharoïdes, l'indice de continuité diminue de 5 à 10% sur les 2 premières semaines avant de dépasser 10% après un mois de percolation. La mesure avec le développement des chemins préférentiels à 2 mois semble atténuer la dégradation avec une évolution plus faible. Le manque de représentativité (l'essai ne se faisant que sur 3 éprouvettes) ou un effet des chemins préférentiels altérant la mesure de la vitesse du son ne peuvent être exclus. L'augmentation de porosité est attribuable pour sa quasi-totalité au développement de la porosité porale. La dissolution dans les échantillons apparaît comme liée à l'élargissement et au développement des pores existants. Le suivi du coefficient d'imbibition capillaire présente un intérêt uniquement pour les éprouvettes ne présentant pas de chemins préférentiels. Il permet néanmoins de suivre l'évolution du faciès matriciel avec un doublement de son coefficient de capillarité sur 2 mois d'essais en lien avec l'élargissement de ces diamètres de pores (de 0,7 à 4  $\mu\text{m}$ ) et la réduction de la porosité piégée ( $N_p$ ).

Ainsi, il est démontré que la circulation hydraulique au sein du gypse entraîne une évolution interne du matériau et non pas qu'une dissolution de contact. Elle peut évoluer jusqu'au développement de chemin préférentiel (structure pré karstique) traversant les échantillons. Ce gradient d'altération sera grandement conditionné par la structure porale, le gypse matriciel nanoporeux n'ayant pas développé de chemin contrairement aux faciès saccharoïdes microporeux. La vitesse de mise en place est également conditionnée par la taille des pores, le faciès à interlits ayant développé des chemins préférentiels plus rapidement que le faciès saccharoïde pur qui ne dispose pas d'interlits pouvant canaliser et guider une partie de l'écoulement, ce qui est cohérent avec la littérature (Dreybrodt and Gabrovsek, 2003; Dreybrodt et al., 1996; Golfier, 2001; Fredd and Fogler, 1998; Daccord et al., 1993).

#### IV. Évolution mécanique

Cette partie vise à quantifier l'évolution du module d'élasticité ( $E$ ) des éprouvettes soumise à la percolation. Afin de pouvoir le quantifier avant et après essais, il est fait le choix de méthodes non destructives, la vitesse de propagation des ondes sonores ( $V_p$ ) et de la fréquence de résonance ( $F$ ). En fin de campagne expérimentale, les dernières éprouvettes ont été soumises à des essais de compression ( $R_c$ ) pour déterminer l'évolution de la contrainte de rupture. Le faible nombre d'éprouvettes rend ces valeurs difficilement interprétables. Elles sont donc indiquées à titre informatif plus que qualitatifs. Les essais sont effectués à l'échelle des éprouvettes (diamètre 50 mm pour un élancement de 2) afin de quantifier la dégradation globale des éprouvettes mais ne permettent pas de quantifier la profondeur atteinte par la dégradation ou son allure dans les différentes sections, il s'agit d'une mesure à l'échelle de l'éprouvette et non localisée (par exemple indentation). Une mise en relation avec la porosité est également effectuée dans un second temps pour déterminer l'effet de l'augmentation du volume de vide dans la masse de gypse. Cela dans le but de définir la relation entre ces deux paramètres pour le développement du modèle numérique. Après l'achèvement de la campagne d'essai, les éprouvettes restantes ont été soumises à un essai de résistance en compression.

##### 1) *Évolution de la résistance en compression*

Les éprouvettes ont subi un essai d'écrasement pour évaluer l'évolution de la contrainte de rupture et du module d'élasticité statique ( $E_{stat}$ ). Ces essais réalisés sur des lots de 1 éprouvette en fonction des pas de temps et des faciès considérés sont plus indicatifs que qualitatifs (Figure 156). Des essais complémentaires afin d'établir des valeurs et des tendances fiables. Le module d'élasticité est calculé à partir de la formule 2.B.29 (chapitre2).

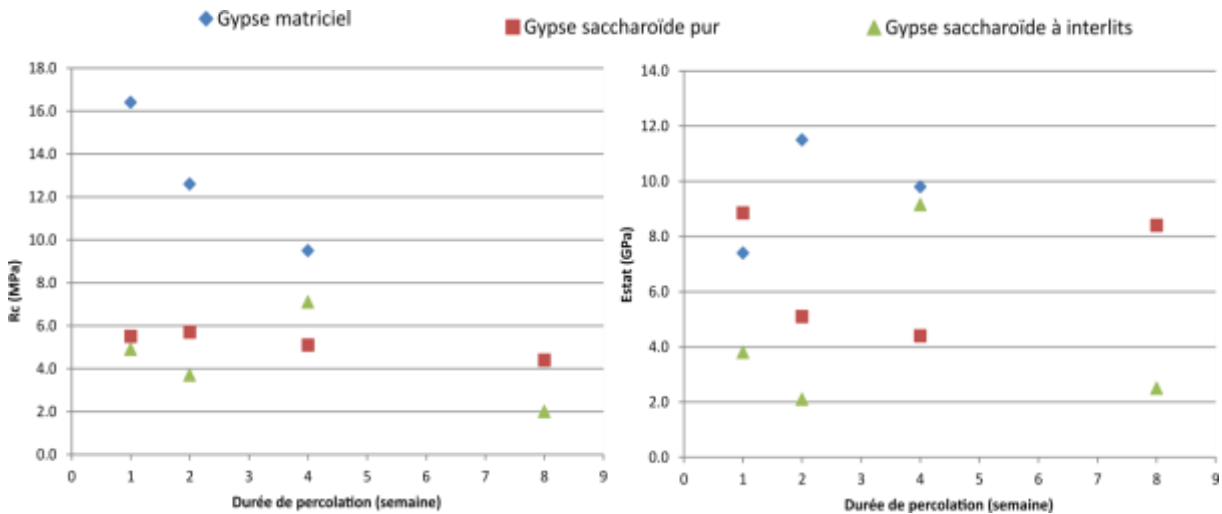


Figure 156 Évolution des contraintes de ruptures et du module d'élasticité statique avec la percolation.

Le gypse matriciel suit une diminution constante de l'ordre de -2GPa par semaine de percolation, ce qui apparait important. D'après cette tendance, la résistance serait nulle à 8 semaines de percolation, soit la durée du test. Hors bien que visiblement altérée, les éprouvettes ne tendaient pas à rompre. Les gypses saccharoïdes suivent une réduction plus progressive de leurs contraintes de ruptures et assez proches malgré les hétérogénéités liées aux chemins préférentiels et aux interlits. Les modules élastiques ( $E_{stat}$ ) sont quant à eux difficilement exploitables.

## 2) Évaluation des modules élastiques par des mesures non destructives

### a) Suivi de l'évolution des modules d'élasticités par méthodes non destructives

Les résultats de l'évolution de la vitesse du son et de la fréquence de résonance sont présentés dans la Figure 157 et dans le Tableau 43. Les résultats bruts sont donnés en annexe III.3.E.

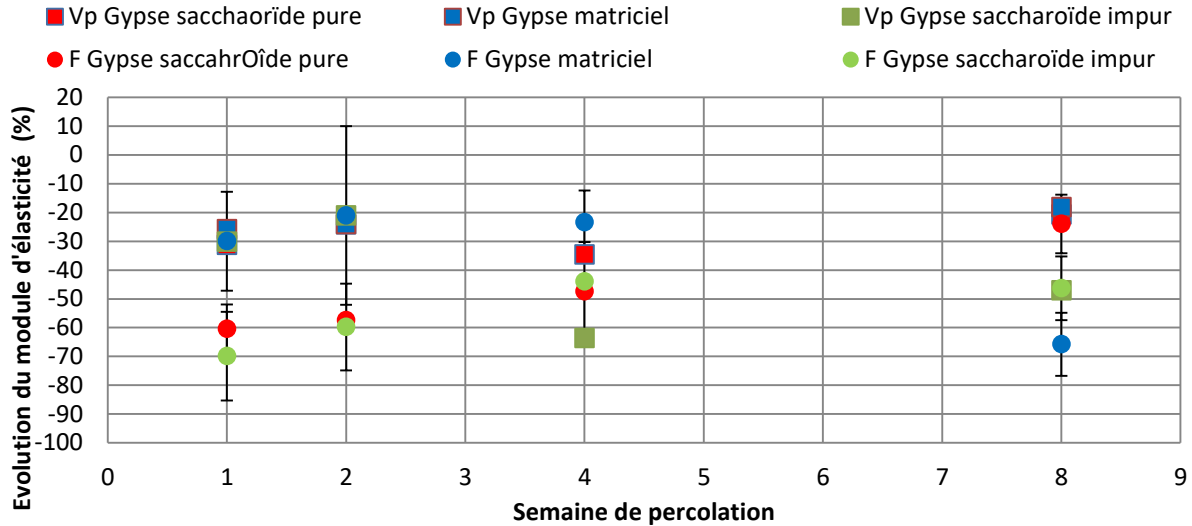


Figure 157 Évolution du module d'élasticité par la méthode de la vitesse du son et de la fréquence de résonance.

**Concernant le gypse matriciel**, après une semaine de percolation, la vitesse du son est peu affectée, avec une réduction de -1,4% de sa valeur initiale. Pour les pas de temps suivants, la réduction de la vitesse du son se stabilise autour d'une perte de 10 % par rapport aux valeurs initiales. Toutefois, le suivi du module d'élasticité calculée à partir de cette vitesse diminue de 25 % dès la première semaine d'essai (de -3,4 GPa). Cette diminution du module élastique est plus importante sur le pas de temps mensuel avec une réduction de -7,8 GPa (soit -34,7%. La mesure à 2 mois donne une réduction de seulement 20% (-3,5 GPa) avec un écart type de 0,6 GPa. Ce faciès présente ainsi une dégradation de 25% de son module élastique ( $E_{dyn}$ ) après une semaine et un second palier de dégradation après 1 mois d'essai à -34,7 % alors que après 2 mois d'essais, les éprouvettes utilisées se sont montrés moins sensibles à la dissolution avec une réduction de seulement 20% du module élastique. Face à cette évolution, des mesures de fréquences de résonance sont réalisées pour calculer ce module par une seconde méthode plus sensible à la dégradation des matériaux d'après la littérature Saad, (2011).

La fréquence de résonance confirme la forte dégradation dès la première semaine d'essai (30%) du module élastique par cette méthode. Cette réduction apparaît stable sur le premier mois d'essai avec des valeurs de 20 à 30% de réduction soit le même ordre de grandeur que par la vitesse de propagation du son. En revanche à 2 mois d'essais, le module d'élasticité est réduit de 60% de sa valeurs initiale ce qui apparaît comme une dégradation importante mais plus plausible qu'une dégradation moindre que les pas de temps précédents comme obtenus par la vitesse du son.

**Pour le gypse saccharoïde pur**, la réduction de la vitesse du son est importante dès le premier pas de temps avec une perte supérieure de 17% par rapport aux vitesses initiales de ces éprouvettes. Cette dégradation initiale s'atténue ensuite sur l'ensemble des pas de temps suivant jusque -10% après 2 mois de percolation, par rapport aux valeurs initiales. La seule hypothèse qui apparaît pertinente est celle du développement des chemins préférentiels pouvant altérer la mesure sur ces éprouvettes, bien que présents après une durée de percolation de 1 mois, ces conduits restent encore de faible dimension. Ainsi pour ce faciès, la réduction du module élastique est comprise entre 10 et 20% dès 1 semaine d'essai mais peu

### CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

évolutive ensuite. Le développement des chemins préférentiels sur les pas de temps mensuels inhibe une partie de l'altération en canalisant le flux hydraulique et ralentir la perte de résistance mécanique. De plus, les conduits préférentiels impactent la propagation des ondes.

Le module d'élasticité est quant à lui réduit de -4,5 à -7,6 GPa sur l'ensemble des mesures soit de -20,8 % à -31,3% avec le même phénomène d'atténuation que pour la vitesse du son donc le calcul est dépendant. La fréquence de résonance subit le même effet de perturbation avec une diminution du module élastique de -14Gpa après 1 semaine d'essai (soit - 60%). Cette réduction s'atténue ensuite sur les mesures mensuelles par le développement des chemins préférentiels perturbants la propagation de l'onde mécanique.

**Tableau 43 Synthèse de l'évolution de la fréquence de résonance et du module d'élasticité associé MV masse volumique, Vp vitesse du son.**

		1 semaine		2 semaines		1 mois		2 mois	
		valeurs	var	valeurs	var	valeurs	var	valeurs	var
Gypse matriciel	F <sub>R</sub> (kHz)	14,8 +/-0,3	-1,2	11,4+/-2,8	-3,7	10,6+/-2,9	-5,0	9,6+/-,05	-2,0
	(E <sub>mod</sub> ) GPa	13,8+/-0,3	-6,3	11,2 +/-0,3	-4,3	9,9 +/- 0,4	-2,8	7,7+/-0,2	-14,8
	V <sub>p</sub> (m/s)	2628 +/- 8	-72	3150 +/- 55	-363	2780 +/-26	-389	2998 +/- 47	-431
	MV (kg/ m <sup>3</sup> )	2363 +/-3,8	+30,0	2330 +/-17	+3,0	2258 +/-15	-75,0	2321 +/-25	-12,0
	E <sub>dyn</sub> (GPa)	14,1 +/-3,2	-3,4	19,3 +/-6,6	-1,1	12,8 +/-3,3	-7,8	12,0 +/-3,9	-3,5
Gypse saccharoïde pur	F <sub>R</sub> (kHz)	14,0 +/-3,0	-10,7	10,2+/-0,6	-7,3	8,4+/-2,6	-10,3	9,9+/-4,5	-1,6
	(E <sub>mod</sub> ) GPa	9,0 +/- 1,5	-14	10 +/- 0,5	-14	8,9 +/-3,3	-8,1	14 +/-5,4	-4,3
	V <sub>p</sub> (m/s)	3042 +/- 79	-614	3179 +/- 10	-474	2724+/-5,3	-669	2948 +/-16,7	-215
	MV (kg/ m <sup>3</sup> )	2294+/-8	+14,0	2291+/-6,7	+11,0	2206 +/-7,8	+4,0	2266 +/-6,2	-14,0
	E <sub>dyn</sub> (GPa)	16,4 +/- 1,8	-7,2	18,0+/-1,0	-5,8	13,4+/-4,8	-5,8	15,3 +/-0,6	-4,5
Gypse saccharoïde à interlits	F <sub>R</sub> (kHz)	8,9 +/-0,7	-1,1	9,4+/-2,1	-3,8	7,1	-5,5	8,4+/-3,7	-1,6
	(E <sub>mod</sub> ) GPa	3,8 +/- 1,8	-9,1	4,2 +/-0,6	-6,8	6,3 +/- 2,0	-5,0	7,8 +/- 3,1	-6,4
	V <sub>p</sub> (m/s)	2285 +/- 14	-319	2212 +/- 24	-468	1602 +/- 54	-1450	1889 +/- 34	-686
	MV (kg/ m <sup>3</sup> )	2316 +/- 6,0	-6,0	2325 +/-5,1	+3,0	2309 +/-18,2	-13,0	2322 +/-5,5	0,0
	E <sub>dyn</sub> (GPa)	10,5+/-1,6	-3,4	9,9 +/-2	-2,7	5,3+/-1,6	-3,8	8,1 +/- 7	-4,9

**Dans le gypse saccharoïde à interlits**, La diminution de la vitesse de propagations des ondes P est croissante pour chaque pas de temps et s'initie de manière rapide dans la première semaine de percolation, de l'ordre de -10% à 1 semaine. Cette diminution est à mettre en relation avec la formation des chemins préférentiels et leurs développements importants. Les pas de temps suivants voient la diminution s'accroître avec chronologiquement - 16, - 49 et - 29%. Cette tendance est toutefois marquée par d'important écart-types de l'ordre de 10% sur les pas de temps hebdomadaires et de 16 et 29% sur les pas de temps mensuels. À 2 mois, la réduction apparaît nettement plus faible qu'à 1 mois de dégradation, le développement des chemins préférentiels et leurs élargissements conduisant à la formation de tube de grande dimension rendant l'essai infaisable ou non fiable pour ce dernier point de mesure. Le module d'élasticité (E<sub>dyn</sub>) est quant à lui affecté de 3 à 5 GPa (Tableau 43) selon les pas de temps considérés, soit jusqu'à un tiers du module initial. Cela peut apparaître peu au regard de l'évolution de la vitesse du son réduite de plus de moitié sur les pas de temps mensuels.

**Les faciès de gypse saccharoïdes** présentent une réduction forte du module calculé à partir de la fréquence de résonance dès la première semaine de percolation (-14 GPa pour le saccharoïde pur et -9,1 GPa pour le saccharoïde à interlits). Cette baisse est constante sur la deuxième semaine pour le faciès pur avant de s'atténuer légèrement. Le faciès à interlits s'atténue légèrement autour de -7GPa sur les points suivants. Ainsi le développement des chemins préférentiels semblent ici atténuer la réduction du module d'élasticité. Cela semble confirmer l'hypothèse d'un effet parasite de ces conduits sur la propagation des ondes mécaniques.

**Le suivi du module d'élasticité par des méthodes destructives s'avère complexe avec un résultat mitigé pour le gypse. Les méthodes non destructives que sont la fréquence de résonance et la vitesse de propagation des ondes P ( $V_p$ ) sont utilisables pour le gypse matriciel avec une réduction de son module élastique de -3,2 à -7,8 GPa sur le premier mois d'essai (valeurs de l'ordre de - 25 à -34,7 %). En revanche le pas de temps à 2 mois se dégrade davantage avec la fréquence de résonance que par l'utilisation de la vitesse du son**

**En revanche ces 2 méthodes ne permettent pas un suivi sur l'ensemble des essais pour les faciès saccharoïdes. Le développement des chemins préférentiels perturbant la propagation des ondes, il en résulte un phénomène d'atténuation de la dégradation des éprouvettes avec la dissolution et le développement de ces conduits, ce qui apparait peu probable. La dégradation du module élastique apparait également amplifiée par la méthode de la fréquence de résonance.**

**b) Relation entre module d'élasticité dynamique ( $E_{dyn}$ ) et porosité**

Dans le premier chapitre, il a été mis en évidence le lien entre porosité et module d'élasticité. Afin de visualiser l'évolution du module avec la porosité, la Figure 158 présente l'évolution du module élastique ( $E_{dyn}$ ) avec l'évolution de la porosité. Le module élastique est calculé à partir de la vitesse de propagation des ondes P. La fréquence de résonance n'est pas utilisée car comme discuté ci-dessus, car elle présente une plus grande sensibilité à l'altération. Notamment avec l'initiation de chemin préférentiel, qui surestime la perte de résistance mécanique. Il a été ajouté la porosité liée aux chemins préférentiels ( $N_{karst}$ ) quand ces derniers se sont développés.

La réduction du module élastique avec la dissolution apparait nettement malgré des écarts types importants (>10%) pour les faciès saccharoïdes. Ces écarts types sont liés aux développements des chemins préférentiels qui faussent les mesures et rendent l'essai peu concluant une fois ces conduits formés. Le gypse matriciel subit une réduction de son module élastique de -20 à -40% pour une augmentation de porosité de 5 à 10%.

Il est intéressant de constater que les gypses saccharoïdes se scindent en 2 pôles avec l'apparition des chemins préférentiels sur le plan de la porosité mais pas de la mécanique (environ -30% du module élastique). La détermination d'une relation entre porosité et module élastique est possible mais mériterait d'être conforté par une multiplication des essais pour réduire les écarts types et une multiplication de pas de temps pour compléter cette courbe. L'équation linéaire déduite présente ainsi une solidité limitée. Il est ainsi fait le choix de ne pas retenir le suivi du module élastique expérimental dans l'élaboration du modèle numérique. Il est pris l'option de se reporter à une loi de Mohr-Coulomb élasto-plastique avec le paramètre de la cohésion comme moyen de déterminer l'évolution mécanique. Ce point est abordé dans le chapitre suivant qui décrit les équations mises en place dans le logiciel Disroc.



## CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

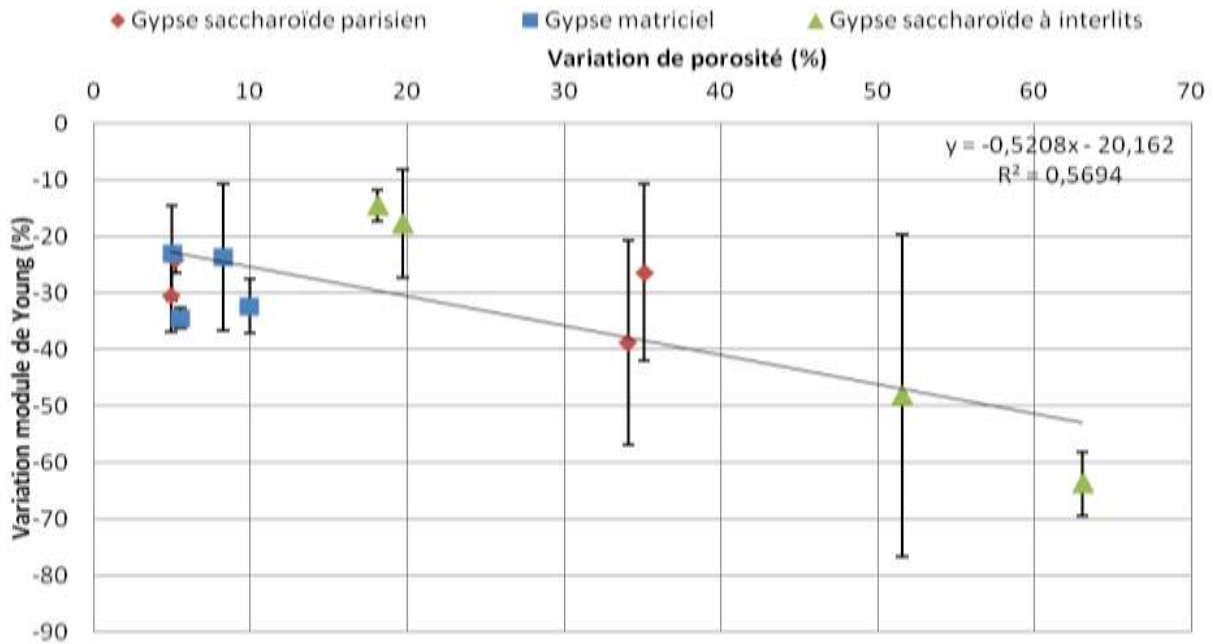


Figure 158 Réduction du module élastique avec l'augmentation de la porosité

**Synthèse :** le suivi du module d'élasticité en parallèle de la dégradation de nos éprouvettes par percolation c'est avéré complexe, avec l'apparition des chemins préférentiels. Les résultats montrent néanmoins une tendance la réduction de la résistance en contrainte avec l'avancement de l'essai de percolation. Cette diminution est lente pour les gypses saccharoïdes (-0,2 et -0,3 GPa par semaine de percolation) et forte pour le faciès matriciel (-2 GPa). Ces tendances ne se retrouvent en revanche pas avec les modules élastiques ( $E_{stat}$ ) qui ne présentent pas de réelles tendances. Le suivi des échantillons par des méthodes non destructives qui a été privilégié montre en revanche une diminution nette des modules d'élasticité ( $E_{dyn}$  et  $E_{mod}$ ). Le module d'élasticité du gypse matriciel diminue de 20 à 30% dès la première semaine de percolation et reste stable pour les durées de percolation suivantes. La fréquence de résonance se révèle comme attendu plus sensible à l'altération. Le pas de temps à 2 mois du gypse montre une réduction de 70% par cette méthode contre -20 % par la vitesse du son. Cette sensibilité accrue de la fréquence de résonance se retrouve également sur les faciès saccharoïdes où la réduction du module élastique est toujours surestimée par rapport à la vitesse du son. Ces 2 faciès voient leurs modules d'élasticités se réduire de -20 % dès la première semaine de percolation puis à -40 et -60% à 1 mois. Les mesures à 2 mois s'avèrent peu interprétables, les mesures étant faussées par les chemins préférentiels. La relation entre évolution du module d'élasticité et porosité mériterait d'être conforté par des essais complémentaires.

## V. Conclusions

Concernant l'étude de l'écoulement de fluide dans les matériaux gypseux, un banc expérimental d'essai de dégradation d'éprouvette de gypse a été mise en place et des essais de percolation d'eau pure ont été appliqués sur des périodes allant jusqu'à 2 mois. Ces essais réalisés sur les faciès saccharoïdes (pur et à interlits) et matriciel ont mis en évidence la présence possible d'un écoulement interne dans le gypse et la mise en place d'un gradient de dissolution au sein des éprouvettes centimétriques (Tableau 44). Les autres faciès n'ont pas été retenus pour ces expériences car en l'absence de porosité (pour les faciès albastroïde et orogénique) ou en présence d'une porosité trop connectée ce qui entraîne des volumes percolés très importants (pour le faciès fer de lance), les essais ne permettent pas d'obtenir des résultats exploitables.

La mise en place du gradient de dissolution nécessite une période d'au moins 1 mois de percolation pour être mise en évidence au niveau des diamètres moyens d'entrée de pore. Le diamètre moyen s'élargit de  $0,8 \mu\text{m}$  à  $8 \mu\text{m}$  pour le gypse matriciel et de  $10$  à plus de  $100 \mu\text{m}$  pour le gypse saccharoïde dans la partie basale des éprouvettes au contact de l'eau pure qui entre dans l'éprouvette percolée. La porosité totale apparaît peu impactée même après deux mois d'essais du fait des propriétés du gypse. En effet, la cinétique de dissolution rapide du gypse permet la mise en place d'un gradient mais seulement sur une section d'épaisseur peu importante, l'eau de percolation se saturant rapidement et inhibant de la sorte la dégradation à plus de quelques centimètres du point d'entrée de l'eau pure. Ces évolutions restent minimes et affectent peu la perméabilité globale des éprouvettes de  $10 \text{ cm}$  de hauteur après 2 mois de percolation. Ces évolutions permettent cependant l'accroissement de la cinétique d'imbibition tant qu'aucun chemin préférentiel n'apparaît. Ces derniers rendent alors l'essai de percolation plus chaotique dans l'évolution des éprouvettes.

Le développement d'un gradient d'altération apparaît donc possible dans le gypse sur une épaisseur de quelques centimètres par des essais de percolation avec de l'eau pur. La mise en place de ce gradient dans les conditions naturelles apparaît néanmoins d'une probabilité plus faible. L'eau déjà chargé en éléments dissous et probablement des carbonates, la saturation du fluide sera déjà partiellement réalisé, ce qui limitera la dissolution en profondeur du massif de gypse. À titre de comparaison, (Zaier, 2021) dans sa thèse indique une dissolution 7 à 8 mois importante à partir d'un aquifère partiellement saturée dans la région de Sevrans (93). Ce rapport varie bien sûr avec la composition initiale du fluide.

Les essais de percolation ont également mis en évidence le développement de chemin préférentiel dans le faciès saccharoïde. Ce phénomène apparaît à partir d'un mois de percolation dans le faciès pur et dès la première semaine dans le faciès à interlits. Le développement de ces conduits canalise une large partie de l'eau de percolation et ralentit fortement la dégradation dans la masse des éprouvettes qui évoluent par élargissement de ces conduits. La mise en place précoce de ces digitations dans le faciès à interlits est liée à la présence de inter stratifications où se localisent de la macroporosité ( $>15 \mu\text{m}$ ).

La cinétique de dissolution rapide du gypse entraîne un taux de dégradation de l'ordre de  $1.10^{-4} \text{ g.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$  (ce qui représente  $0,3$  grammes par jour à l'échelle des échantillons testés), ce qui affecte au final peu la porosité totale des éprouvettes centimétriques testées sur la période considérée. Au niveau mécanique, le module d'élasticité est impacté dès la première semaine de percolation avec des réductions de  $10$  à  $20\%$  du module élastique dynamique obtenu par la vitesse de propagation des ondes ( $V_p$ ). La dégradation apparaît dès 7 jours de percolation mais n'évolue plus dans la suite des essais ou évolue de manière chaotique. Une relation semble toutefois se dessiner avec la dégradation entre la variation de porosité et le module

## CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

élastique. Mais le  $R^2$  de la relation n'étant pas optimum, cette relation devra être consolidée en réalisant un plus grand nombre d'essai.

Aussi l'utilisation du suivi des modules d'élasticité dynamique réalisé au cours du travail expérimental n'a pas été utilisée pour l'élaboration du modèle numérique HMC. Il était initialement imaginé inscrire dans le code de calcul Disroc cette relation de l'évolution du module d'élasticité et donc de la mécanique à partir de la valeur de la porosité à chaque itération. Il a été choisi de garder cette approche mais en utilisant le paramètre de la cohésion et des valeurs de la littérature. Le développement de cette relation est détaillé avec l'ensemble du système d'équation proposé dans le chapitre suivant.

**Tableau 44 Évolution des principaux paramètres pétrophysiques avec la dégradation du gypse en percolation**

		1 semaine		2 semaines		1 mois		2 mois	
		valeurs	var	valeurs	var	valeurs	var	valeurs	var
Gypse matriciel	Nt(%)	10,4 +/- 0,5	+0,8	9,4 +/- 1,7	+0,6	12,1 +/- 3,1	+0,1	10,0 +/- 3,5	0.7
	Vp (m/s)	2628 +/- 8	-72	3150 +/- 55	-363	2780 +/-26	-389	2998 +/- 47	-431
	MV (kg/m <sup>3</sup> )	2363 +/- 3,8	30	2330 +/-17	3	2258 +/-15	-75	2321 +/-25	-12
	E <sub>dyn</sub> (GPa)	14,1 +/-3,2	-3.4	19,3 +/-6,6	-1.1	12,8 +/-3,3	-7.8	12,0 +/-3,9	-6
Gypse saccharoïde pur	Nt(%)	8,3 +/- 1,0	+0,4	8,1 +/- 0,5	+0,4	14,6 +/- 4,2	+5,1	13,2 +/- 2,9	+2,9
	Vp (m/s)	3042 +/- 79	-614	3179 +/- 10	-474	2724 +/-5,3	-669	2948 +/-16.7	-215
	MV (kg/m <sup>3</sup> )	2294 +/-8	14	2291 +/-6,7	11	2206 +/-7,8	4	2266 +/-6,2	-14
	E <sub>dyn</sub> (GPa)	16.4 +/- 1,8	-7.2	19,7 +/-1,9	-5.3	14,0 +/-4,8	-8.7	12,6 +/-2,7	-7.1
Gypse saccharoïde à interlits	Nt(%)	9,0 +/- 2,8	+1,2	8,4 +/- 1,1	+1,4	8,8 +/- 0,7	+1,6	9,2 +/- 3,0	+1,6
	Vp (m/s)	2285 +/- 14	-319	2212 +/- 24	-468	1602 +/- 54	-1450	1889 +/- 34	-686
	MV (kg/m <sup>3</sup> )	2316 +/- 6,0	-6	2325 +/-5,1	3	2309 +/-18,2	-13	2322 +/-5,5	0
	E <sub>dyn</sub> (GPa)	10,5 +/-1,6	-3.4	9,9 +/-2	-2.7	5,3 +/-1,6	-3.8	8,1 +/- 7	-4.9

### C. Résultats de l'étude des cinétiques de dissolution

#### Introduction

Dans cette troisième partie de chapitre, la cinétique de dissolution du gypse est abordée. Le gypse est en effet une roche avec une cinétique de dissolution rapide et il ne faut environ que 10 min par exemple pour atteindre 90% de la saturation en sulfates d'une eau initialement pure au contact du matériau. Cette dissolution atteint plus de 2g.L<sup>-1</sup> de gypse dissous à 20°C ce qui place le gypse au même titre que les sels dans la catégorie des matériaux fortement solubles. Cette dissolution est également sensible aux paramètres physico-chimiques du milieu environnant le matériau, notamment l'augmentation de la température qui favorise la solubilité du gypse. La cinétique de dissolution se caractérise par ailleurs par un comportement avec deux régimes avec un changement autour de 90% de la saturation.

L'étude de la variation de la solubilité et de la cinétique de dissolution dans de l'eau pure en fonction du faciès de gypse considéré fait l'objet de la présente partie. Comme décrit dans le chapitre 1, le gypse est un minéral qui comporte un plan de clivage parfait [010] et deux clivages secondaires. Lors de leur formation, les conformations prises par les minéraux gypseux avec une quantité variable de phases secondaires, peuvent favoriser la création de certains clivages par rapport à d'autres. L'objectif est ici de vérifier l'existence ou non d'un

effet de la cristallisation sur la dissolution. En effet, la dissolution est dépendante pour partie du nombre de sites disponibles pour initier cette dissolution et varie en fonction des faciès considérés. L'effet de la température et de la vitesse d'agitation décrit dans la littérature est également investigué pour montrer l'amplification du phénomène de dissolution en fonction du faciès de gypse considéré. Cette approche reprend pour partie les travaux menés par Zaier (2021) qui a effectué des essais de même type pour des températures plus faibles.

Précédemment, le rôle de la porosité avec une structuration variable a été démontré lors de la génération d'un écoulement dans les matériaux gypseux. La porosité contrôle également le phénomène de dissolution, permettant le renouvellement du fluide sous-saturé au niveau des surfaces gypseuses. Afin de prendre en compte uniquement la dissolution sous son aspect chimique (sans tenir compte des phénomènes hydrauliques et de diffusion), des essais de dissolution sont réalisés sur des échantillons de gypse broyés (test d'une fraction broyée/tamisée entre 200-500  $\mu\text{m}$ ). L'agitation des poudres mises en suspension permet de s'affranchir du terme diffusif des produits/réactifs au voisinage de la surface des grains de poudre. Afin de visualiser l'effet de la granulométrie de la poudre (surface spécifique), une partie des essais est reproduite avec une fraction inférieure à 200  $\mu\text{m}$ . Les essais sont réalisés pour différentes conditions de température et de vitesse d'agitation (voir chapitre 2). Le taux de dissolution intégrant la notion de surface, des mesures de surface spécifique (BET  $\text{N}_2$ ) sont réalisés pour quantifier les surfaces (en  $\text{m}^2/\text{g}$ ) avant et au cours des expériences.

En parallèle, des essais de dissolution sur des disques de gypse polis mis en rotation une fois immergés dans de l'eau pure, sont effectués pour étudier l'évolution des surfaces (rugosité, dissolution différentielle, rôle des hétérogénéités dans l'initiation de chemin préférentiel...) et pour déterminer des taux d'érosion à l'échelle d'une surface massive et non d'un ensemble de grains (surface de matériau divisé). Ainsi, il est possible de déterminer le taux de dissolution pour des conditions plus proches d'un matériau de site ou du moins des éprouvettes décimétriques testées en laboratoire. On observe en particulier l'arrachement des grains (dissolution versus érosion de surface), la dissolution homogène ou non des phases, la présence des phases secondaires... L'évolution des surfaces avec la dissolution préférentielle de certains éléments comme les cristaux de gypse millimétriques pour le faciès matriciel ou l'effet des inter-stratifications argilo-ferrugineuses pour le faciès à interlits, permettent de mieux comprendre la localisation et l'initiation des chemins préférentiels. Pour compléter ces observations sur les disques, un montage prototype pour un essai de dissolution sur plaque (voir chapitre 2) a été développé pour mieux visualiser à l'échelle 1:1 les effets d'un écoulement d'eau pure renouvelée. Une description des premiers éléments est donnée ainsi que les enseignements et voies d'améliorations possibles de l'appareil.

### **I. Essai de dissolution sur poudre**

L'essai de dissolution sur poudre (ou batch) est un essai couramment répandu dans la littérature pour la détermination des cinétiques de dissolution des minéraux (Fu et al., 2009; Dutka et al., 2020) et notamment le gypse (MacDonald, 1953; Barton and Wilde, 1971; Jeschke et al., 2001b). Une des explications à son importante représentation est sa simplicité de mise en œuvre. La méthode de suivi de la dissolution peut varier en fonction des réactions, des composants et des capteurs (sonde de pH, de conductimétrie, électrode spécifique...). Dans ce travail et après avoir testé les électrodes spécifiques au  $\text{Ca}^{2+}$  finalement jugées trop variables dans leur mesure après calibration, on utilise une simple sonde conductimétrique dont les caractéristiques sont données en chapitre 2. La conductivité est traduite ensuite en concentration de gypse dissous via des équations exposées dans le présent chapitre. Les résultats des essais de dissolution sur poudre sont présentés et la détermination des constantes

de dissolution du gypse qui en découlent est discutée notamment en fonction de la température, de la vitesse d'agitation et de la granulométrie des poudres testées.

### 1) Relation entre conductimétrie et concentration en gypse dissous

La conductivité électrique d'une solution mesure la facilité avec laquelle un courant peut traverser une solution contenant des ions chargés. La conductivité augmente en effet avec la force ionique (concentration en ions). Mais la méthode conductimétrique ne permet pas de discriminer la composition de la solution.

Dans le cadre de ce travail, on part sur l'hypothèse que seul le gypse ( $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ) participe à l'augmentation de la conductivité. Cette hypothèse se base sur les résultats d'analyses minéralogiques par DRX et analyses chimiques du contenu total en éléments chimiques des matériaux testés (par ICP/OES). En effet, ces analyses montrent la présence de minéraux secondaires (souvent en faible ou très faible quantité) avec des solubilités plus faibles voire proche de 0 par rapport au gypse (Tableau 26). Il est rappelé ici la solubilité des principaux minéraux annexes. La solubilité de la célestine est par exemple de 0,01 g/L à 20°C (Poonosamy et al., 2019) comparée à 2.1g/L à 20°C pour le gypse. La calcite qui atteint 6% dans gypse matriciel a une solubilité de 0,014 g/L à 25°C (Ek, 1973).

La solution au contact du gypse qui se dissout se charge pour l'essentiel en ions calcium ( $\text{Ca}^{2+}$ ) et en sulfates ( $\text{SO}_4^{2-}$ ) en proportion équivalente via la dissociation du gypse ( $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ). Il s'agit du principe de congruence discuté dans le chapitre 1 (Jambon and Thomas, 2009)

Afin d'établir la relation entre conductivité ( $\mu\text{S}/\text{cm}$ ) et concentration en gypse dissous ( $\text{mol}/\text{L}$ ), une série d'essais de dissolution par palier a été effectuée. On ajoute à un volume d'eau pure connu (80 mL), des quantités de gypse successives (d'environ 50 mg) (Figure 159). La conductivité est mesurée après chaque ajout et une fois sa valeur stabilisée. L'opération est répétée jusqu'à saturation de la solution. Pour le volume utilisé (80mL), une masse comprise entre 0,3 et 0,4 g est nécessaire selon les faciès ou la température considérée pour atteindre la saturation. Le calcul de la concentration est effectué à partir de la masse molaire du gypse et qu'il est le seul à participer à la dissolution.

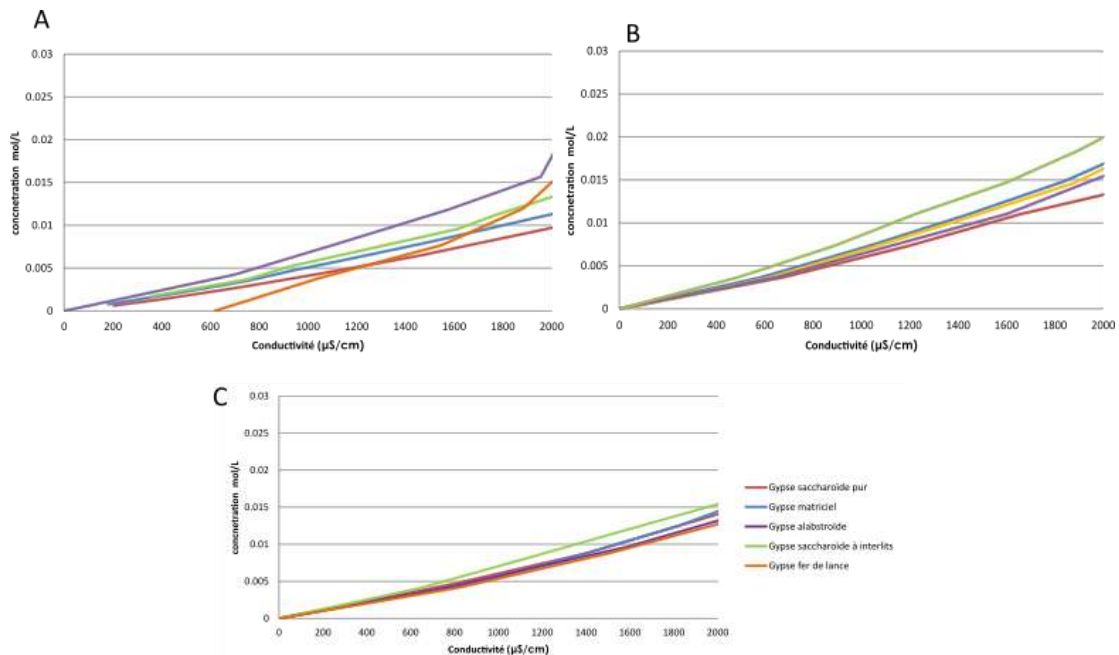


Figure 159 Relation entre conductivité électrique en solution et concentration en gypse dissous à (a) 25°C (b) 30°C et (c) 35°C

## CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

La courbe obtenue est ajustée par un polynôme de degré 3 et est ensuite utilisée pour convertir la conductivité en concentration. Ces équations sont données dans le Tableau 45 avec leur R<sup>2</sup>.

**Tableau 45 Équation de conversion conductivité/concentration pour l'ensemble des faciès et température testés.**

Gypse testé	25 °C		30°C		35°C	
	Équation polynomiale (degré 3)	R <sup>2</sup>	Équation polynomiale (degré 3)	R <sup>2</sup>	Équation polynomiale (degré 3)	R <sup>2</sup>
Gypse matriciel	$1.7 \cdot 10^{-5}x + 1.3 \cdot 10^{-8}x^2 - 4.10^{-12}x^3$	0.92	$5e^{-13}x^3 - 4e^{-11}x^2 + 6e^{-6}x - 5e^{-5}$	0.99	$-4e^{-13}x^3 - 3e^{-9}x^2 + 3e^{-6}x - 1e^{-5}$	0.99
Gypse saccharoïde pur	$7.1 \cdot 10^{-6}x + 3.5 \cdot 10^{-9}x^2 - 1.4 \cdot 10^{-12}x^3$	0.99	$2e^{-12}x^3 - 5e^{-9}x^2 + 9e^{-6}x - 2e^{-4}$	0.98	$-8e^{-13}x^3 - 2e^{-9}x^2 + 4e^{-6}x - 4e^{-5}$	0.99
Gypse saccharoïde à interlits	$7 \cdot 10^{-6}x + 2 \cdot 10^{-9}x^2 - 8 \cdot 10^{-13}x^3$	0.99	$2e^{-12}x^3 - 4e^{-9}x^2 + 1e^{-5}x - 2e^{-4}$	0.99	$-8e^{-14}x^3 - 1e^{-9}x^2 + 6e^{-6}x - 4e^{-5}$	0.99
Gypse albastroïde	$8 \cdot 10^{-5}x + 6 \cdot 10^{-8}x^2 - 2 \cdot 10^{-11}x^3$	0.97	$1e^{-12}x^3 - 2e^{-9}x^2 + 7e^{-6}x - 7e^{-5}$	0.98	$-2e^{-12}x^3 - 4e^{-9}x^2 + 8e^{-6}x - 7e^{-5}$	0.99
Gypse fer de lance	$7 \cdot 10^{-5}x + 5 \cdot 10^{-8}x^2 - 2 \cdot 10^{-11}x^3$	0.96	$6e^{-13}x^3 - 5e^{-10}x^2 + 7e^{-6}x - 2e^{-4}$	0.99	$-3e^{-12}x^3 - 1e^{-8}x^2 + 3e^{-5}x - 1e^{-5}$	0.99

Cette méthode est également utilisée par (Brunet, 2017) qui relie pH et dissolution des carbonates ou par Zaier (2021) qui relie la conductivité à la dissolution du gypse. Cette dernière utilise un polynôme de degré 3 (éq3.C.1) sur la première partie de la courbe de dissolution, où x est la conductivité.

$$C = 4,35 \cdot 10^{-6}x + 1,42 \cdot 10^{-9}x^2 - 1,08 \cdot 10^{-13}x^3 \quad (\text{éq 3.C.1})$$

Les résultats de la présente étude permettent d'obtenir des équations du même ordre de grandeur que ceux obtenus par Zaier (2021), ce qui conforte les équations obtenues et leurs exposants.

### **2) Mesure de la surface spécifique des poudres à l'analyseur BET<sub>N2</sub>**

L'analyse de la littérature (Chapitre 1.B) sur la dissolution a mis en évidence l'importance de la surface de contact entre le fluide et le solide. Des mesures BET à l'azote ont été réalisées afin de déterminer la surface réelle des échantillons par unité de masse. La surface spécifique réelle obtenue prend en compte la rugosité des éléments granulaires mais également les surfaces internes accessibles au gaz au niveau des pores (plus la taille des grains de gypse est petite et plus cette surface interne devient faible par rapport aux surfaces externes).

Jeschke et al. (2001) trouvent une surface de l'ordre de 3m<sup>2</sup>.g<sup>-1</sup> pour une fraction de gypse synthétique de 20 à 200 μm, ce qui est cohérent avec le faciès albastroïde (sans porosité interne). L'origine synthétique de son échantillon peut être une source limitant la rugosité par rapport aux conditions naturelles qui impacte les surfaces (par interruption/reprise de la précipitation, roulement et choc des éléments ...).

Les essais sont réalisés sur les 2 fractions granulométriques utilisées pour les essais de dissolution sur poudre (0-0,2 mm et 0,2-0,5 mm). La surface spécifique a également été déterminé pour une classe granulométrique plus grossière (de 2 à 5 mm), bien que non utilisé pour les essais de dissolution. L'objectif était de visualiser l'évolution de la surface spécifique entre des classes granulométrique éloignées jusqu'à des éléments de taille millimétrique.

Les résultats du Tableau 46 mettent en évidence le rôle de la taille des éléments vis-à-vis de la surface spécifique développée (le gypse orogénique n'a pas été investigué lors de ces tests car intégré tardivement au panel d'étude).

### CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

Tableau 46 Détermination de la surface spécifique (m<sup>2</sup>/g) par la méthode BET

classe granulométrique	0 à 0,2 mm	0,2 à 0,5 mm	2 à 5 mm
	S <sub>s</sub> m <sup>2</sup> /g	S <sub>s</sub> m <sup>2</sup> /g	S <sub>s</sub> m <sup>2</sup> /g
Gypse matriciel	4,8 +/- 0,04	3,8 +/- 0,02	9,6 +/- 0,07
Gypse saccharoïde pur	8,0 +/- 0,02	1,9 +/- 0,01	0,6 +/- 0,01
Gypse saccharoïde à interlits	7,5 +/- 0,01	0,9 +/- 0,01	0,4 +/- 0,003
Gypse fer de lance	8,9 +/- 0,02	1,7 +/- 0,01	0,3 +/- 0,004
Gypse albastroïde	1,9 +/- 0,04	1,8 +/- 0,01	0,4 +/- 0,002

La réduction de la taille des éléments augmente de manière importante la surface spécifique développée via la rugosité de l'ordre de 8% pour le faciès albastroïde, de 21% sur le faciès matriciel, de 76 et 80% pour les faciès saccharoïde pur et fer de lance, enfin de 88% pour le faciès saccharoïde à interlits en augmentant la classe granulométrique de 0-0,2 à 0,2-0,5mm.

Les faciès albastroïdes et matriciel apparaissent néanmoins comme des exceptions à ce phénomène. Le gypse albastroïde montre une surface spécifique assez proche pour les 2 classes granulométriques inférieurs à 1 mm (1,9 et 1,8 m<sup>2</sup>/g), alors que les autres faciès voient leurs surfaces augmenter de plus d'un mètre carré avec la réduction de la granulométrie. Ce fait peut s'expliquer par l'aspect massif et compact de ce faciès, qui ne développe pas de rugosité forte avec la réduction de la taille de ces éléments qui se réduisent de manière cassante le long des clivages. En revanche, la surface du gypse albastroïde est beaucoup plus faible pour les éléments millimétriques (0,35 m<sup>2</sup>/g), soit le même ordre de grandeur que les autres faciès

Notez également que la sélection des fractions par tamisage a un impact sur les classes granulaires présentant une gamme de tailles de particules assez resserrée mais pas non plus extrêmement resserrée). On peut donc avoir une répartition des tailles non uniforme sur la gamme avec des particules toutes très proches de 0.2mm dans la gamme 0.2-0.5 mm, tout dépend du broyage ou sur-broyage effectué.

Le faciès matriciel présente une évolution similaire avec la réduction de sa surface spécifique avec l'augmentation de taille des particules de la classe granulométrique. La réduction de S<sub>s</sub> est plus limitée que pour les autres faciès soit -1 m<sup>2</sup>/g environ contre -5 m<sup>2</sup>/g pour les faciès saccharoïdes et fer de lance. La mesure BET effectuée sur des éléments millimétriques donne par contre une valeur inattendue de 9,6 m<sup>2</sup>/g, soit une multiplication par 2 de la surface spécifique par rapport à la classe (0 - 0,2) mm, alors que les autres gypses voient leurs surfaces diminuer. L'explication de cette valeur est issue de la structure matricielle du faciès qui permet de détecter la porosité interne des grains si cette dernière est inférieure à 0,1 µm. La porosité nanoporale plus développée dans ce faciès (voir PIM dans les parties précédentes) peut ainsi être mesurée par l'appareil pour des grains de plus gros diamètres. Les méso et macropores des autres faciès sont quant à eux au-dessus de la limite de détection.

Notez enfin que la surface spécifique mesurée est considérée constante dans les calculs effectués à partir des courbes de dissolutions notamment le taux de dissolution en mol.m<sup>2</sup>.sec<sup>-1</sup>. Or les surfaces sont évolutives avec la réduction de la taille des grains de gypse en suspension lors de l'essai de dissolution, et ce jusqu'à leur dissolution complète. Le calcul du taux de dissolution τ<sub>2</sub> proche de la saturation, c'est-à-dire lorsque les grains de poudre de gypse atteignent leur taille la plus faible ne tient pas compte de ce changement de taille.

### 3) Détermination des cinétiques à 25°C

Dans cette partie, les résultats des essais de dissolution sur les différents faciès de gypse à 25°C sont présentés pour la classe granulométrique [0,2-0,5] mm et une vitesse de 300 tr/min (tpm). Cette température est la plus faible utilisée dans cette étude et une des plus fréquemment rencontrée dans la littérature (Lebedev, 2015; Zaier, 2021; Raines and Dewers, 1997; Fabre and Dayre, 1982; Jeschke et al., 2001b; Sun et al., 2015). L'effet de la vitesse, de la granulométrie et de la température seront abordés dans les points suivants.

La détermination des taux de dissolution ( $\tau$ ), des ordres de réactions chimiques ( $n$ ) et de la concentration de saturation est synthétisée dans le Tableau 47. Les notations 1 et 2 renvoient aux régimes de double cinétique du gypse (l'indice 1 faisant référence au régime loin de la saturation et l'indice 2 au régime proche de la saturation). Les essais sont réalisés 3 fois, un écart type a pu être estimé. Cependant il est à noter que les essais restent délicats à interpréter notamment pour l'estimation de  $\tau_2$  avec des écarts types relativement forts pouvant atteindre 50% du taux de dissolution. En effet, la seconde cinétique de dissolution peut présenter des évolutions brutales de la pente et ainsi être une source d'approximations.

Tableau 47 Détermination des taux de dissolution et ordre chimique de la réaction

	Gypse matriciel	Gypse saccharoïde pur	Gypse fer de lance	Gypse albastroïde	Gypse saccharoïde à interlits
$n_1$	1,6 +/- 0,2	1,6 +/- 0,2	1,6 +/- 0,1	1,7 +/- 0,1	1,3 +/- 0,1
$n_2$	3,0 +/- 0,1	2,5 +/- 0,6	4,2 +/- 0,1	4,3 +/- 0,1	3,1 +/- 0,4
$\tau_1$ (mol.m <sup>-2</sup> .sec <sup>-1</sup> )	9,9e <sup>-4</sup> +/- 2,2e <sup>-4</sup>	1,8e <sup>-3</sup> +/- 5,4e <sup>-4</sup>	1,3e <sup>-3</sup> +/- 8,1e <sup>-4</sup>	1,8e <sup>-3</sup> +/- 6,6e <sup>-4</sup>	3,1e <sup>-3</sup> +/- 6,6e <sup>-4</sup>
$\tau_2$ (mol.m <sup>-2</sup> .sec <sup>-1</sup> )	0,14 +/- 0,06	0,45 +/- 0,13	0,32 +/- 0,16	0,36 +/- 0,08	0,26 +/- 0,11
$C_{sat}$ (mmol.L <sup>-1</sup> )	16,1 +/- 0,1	16,4 +/- 0,1	16,0 +/- 0,1	16,5 +/- 0,4	16,1 +/- 0,0
Valeur moyennée sur l'ensemble de la courbe					
$n$	1,7 +/- 0,3	2,3 +/- 0,2	2,1 +/- 0,5	2,7 +/- 0,6	2,2 +/- 0,3
$\tau$ (mol.m <sup>-2</sup> .sec <sup>-1</sup> )	1,7e <sup>-2</sup> +/- 2,7e <sup>-3</sup>	6,8 e <sup>-2</sup> +/- 2,5e <sup>-2</sup>	6,1e <sup>-2</sup> +/- 2,5e <sup>-2</sup>	6,8e <sup>-2</sup> +/- 7,2e <sup>-3</sup>	9,0e <sup>-2</sup> +/- 1,7e <sup>-2</sup>

La première observation est que l'ensemble des concentrations en gypse dissous à la saturation sont équivalentes pour le panel de gypse étudié avec une valeur de 16 mmol.L<sup>-1</sup>, soit environ 2,8 g.L<sup>-1</sup>. Ce qui est en accord avec la littérature, bien que dans la moyenne haute des solubilités obtenues (Tableau 26). Ces concentrations sont calculées à partir des polynômes de degré 3 décrivent dans le premier point de ce chapitre.

La première cinétique se compose ainsi d'un  $\tau_1$  de l'ordre de 1.10<sup>-3</sup> mol.m<sup>-2</sup>.sec<sup>-1</sup> et d'un  $n_1$  compris entre 1,6 et 1,7. La deuxième possède des valeurs de l'ordre de 1.10<sup>-2</sup> mol.m<sup>-2</sup>.sec<sup>-1</sup> et d'un  $n_2$  compris entre 2,5 et 4,3. L'ordre de réaction chimique associé à la première partie de la réaction (loin de la saturation) avec des valeurs de 1,6 à 1,7 et des écarts types de 0,1 est le même pour l'ensemble des faciès ayant une teneur en gypse supérieure à 90%. Le gypse saccharoïde à interlits présente un ordre de réaction légèrement inférieur (soit 1,3). Ces valeurs sont en accord avec la littérature (Zaier, 2021; Jeschke et al., 2001b; Colombani, 2008).

De même, la deuxième cinétique présente des ordres de réactions  $n_2$  plus étalés, compris entre 2,5 et 4, comme mentionnés dans la littérature. Les écarts-types restent minimales à l'exception



## CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

des écarts-types calculés pour les faciès saccharoïdes légèrement plus importants (soit 0,6 et 0,4). Les ordres chimiques de réaction ( $n_2$ ) moyens autour de 4 corroborent les valeurs obtenues par Jeschke et al., (2001) tandis que Zaier, (2021) obtient des valeurs comprises entre 2 et 3.

Dans notre cas, les valeurs de  $n_2$  obtenues entre les différents faciès sont assez étalées. Une hypothèse avancée dans la littérature pour expliquer cette variabilité est en lien avec les défauts dans le maillage cristallin ou des agrégats de cristallisation. Une autre hypothèse testée par Zaier (2021) quant au rôle potentiel des impuretés, n'a pas montré d'évolution des coefficients  $n$  avec l'ajout d'élément non soluble à l'essai comme le quartz et/ou de l'argiles. La présence de phases secondaires comme il s'en trouve en quantité dans le gypse saccharoïdes à interlits ne serait donc pas à l'origine de la variabilité de  $n_2$ . En effet, l'ordre de réaction  $n_2$  est de même ordre de grandeur ( $n_2=3,1$ ) que celui des gypses matriciels ( $n_2=3,0$ ) et saccharoïde pure ( $n_2=2,5$ ). Ces ordres de réactions sont en revanche inférieurs à celui des formes plus massives que sont les faciès fer ( $n_2=4,2$ ) de lance et albastroïdes ( $n_2=4,3$ ).

Le taux de dissolution dans la première phase de la cinétique de dissolution ( $\tau_1$ ) loin de la saturation est de l'ordre de  $1.10^{-3} \text{ mol.m}^{-2}.\text{sec}^{-1}$  pour les faciès avec une teneur en gypse supérieur à 90% et de l'ordre de  $3.10^{-3} \text{ mol.m}^{-2}.\text{sec}^{-1}$  pour le gypse saccharoïde à interlits. Ainsi ces valeurs sont très proches même pour un faciès comportant des minéraux insolubles. La teneur en gypse du faciès saccharoïde à interlits reste néanmoins importante (86,7%), ce qui peut expliquer ce faible écart. Le gypse est considéré comme le seul élément à se dissoudre activement sur l'échelle de temps réduite de l'essai batch, soit environ 24 h. L'ordre de grandeur obtenu est en accord avec la littérature (Zaier, 2021; Jeschke et al., 2001b).

Le taux de dissolution dans la seconde partie de la cinétique de dissolution proche de la saturation ( $\tau_2$ ) est plus important que le premier avec des valeurs de l'ordre de  $10^{-1} \text{ mol.m}^{-2}.\text{sec}^{-1}$ . Les faciès fer de lance et saccharoïde à interlits présentent des écarts types importants. Ces forts écarts sont également notés par Zaier (2021) pour la deuxième partie de la courbe.

Dans la littérature Jeschke et al. (2001) avance un effet des impuretés (nucleus de cristallisation, autres minéraux....) pouvant entraîner des variations locales de la dissolution à proximité de la saturation. Ainsi le comportement proche de la saturation peut être influencé par les propriétés de texture des gypses ou la présence d'impuretés.

Ainsi cette deuxième cinétique est peu évidente à répéter. Dans cette partie où la conductivité électrique mesurée va peu varier, la sensibilité des capteurs (la précision passant de 1 à 10  $\mu\text{S/cm}$  au-delà de 2000  $\mu\text{S/cm}$ ), des approximations d'arrondies dans le traitement des données lors des calculs ou encore la variation de surface spécifique qui n'est pas prise en compte, sont de nombreuses sources possibles pouvant impacter la répétabilité voire la valeur elle-même de taux de dissolution. On note toutefois une bonne répétabilité pour chaque faciès et des valeurs relativement homogènes entre les faciès.

Les taux de dissolution de la deuxième cinétique obtenus sont supérieurs à ceux de Zaier, (2021) ou Jeschke et al. (2001) d'un facteur 10, ce qui est lié à la surface spécifique plus importante de réaction de nos échantillons (mesure obtenue par BET avec plusieurs  $\text{m}^2.\text{g}^{-1}$  de surface réactive dans le Tableau 46 contre une approximation géométrique utilisée par les auteurs cités. Ces derniers utilisent une  $S_s$  de l'ordre de 70  $\text{cm}^2/\text{g}$ . Jeschke et al. (2001) indique dans sa publication que l'approximation géométrique est « insuffisante » et est une source d'imprécision.

Si on regarde maintenant de quelle manière utiliser les résultats obtenus, Guo et al. (2016) dans un essai de modélisation de la dissolution d'un volume de gypse à partir des résultats de Jeschke et al., (2001), déterminent que l'utilisation d'une cinétique simple plutôt qu'une

cinétique double présente une variation minimale, voire négligeable des résultats obtenus (Figure 160). Si on considère un régime monophasique comme proposé par Guo et al. (2016), les taux de dissolution ( $\tau$ ) obtenus en moyennant l'ensemble de la courbe d'essai est de l'ordre de 1 à  $9.10^{-2} \text{ mol.m}^{-2}.\text{sec}^{-1}$  et des ordres de réaction (n) entre 1,7 et 2,7.

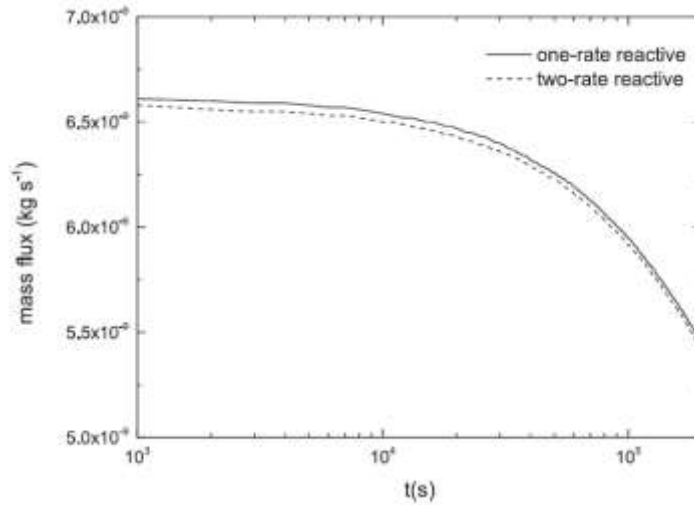


Figure 160 Effet sur le flux de dissolution d'un régime de dissolution simple ou double. Guo et al., (2016)

Les valeurs des résultats obtenus sont relativement proches pour l'ensemble des faciès étudiés. **Ainsi, le rôle de la morphologie des cristaux de gypse qui constituent les matériaux testés pour les mêmes conditions expérimentales apparaît limité en ce qui concerne la cinétique de dissolution.**

Les résultats présentés sont en accord avec la littérature sur le sujet, littérature qui ne présentait que peu d'indication sur les faciès testés. Ce travail confirme que la dissolution du gypse pour des éléments granulaires de même taille est proche quel que soit le faciès. Par contre, le rôle des insolubles sur la seconde cinétique n'est pas clairement établi. Le gypse saccharoïde à interlits (avec 13% d'impuretés) ne présente pas en effet de variation significative par rapport aux autres faciès ce qui est en accord avec les résultats des essais avec les ajouts d'éléments insolubles effectués par Zaier (2021). Ce faciès bien que plus hétérogène présente une teneur en gypse malgré tout importante. Aussi la teneur en minéraux secondaires peut ne pas être suffisante pour induire des différences significatives au niveau chimique. Les faciès granulaires présentent en revanche des ordres de réactions  $n_2$  inférieurs aux formes plus massives que sont les faciès albaströïdes ou fer de lance. Le développement d'une plus forte cristallinité notamment au niveau de l'empilement des clivages pourraient être une piste d'investigation pour la mise en évidence de différence dans la cinétique de dissolution de ces différents faciès.

L'absence d'évolution des paramètres caractéristiques de la cinétique de dissolution sur poudre exclut également ces facteurs comme cause de la formation de chemins préférentiels précoces pour certains faciès de gypse. Cela conforte l'hypothèse de l'origine des whormholes qui serait en lien avec la porosité et sa structure (répartition des familles de pore et connectivité).

Enfin dans un modèle, considérer un régime monophasique de dissolution est possible comme le montre Guo et al. (2016). Ce régime n'entraînerait pas de modification significative des effets de la dissolution selon ces auteurs (Figure 160). Il est obtenu alors des constantes de l'ordre de 1 à  $9.10^{-2} \text{ mol.m}^{-2}.\text{sec}^{-1}$  et d'un n compris entre 1,7 et 2,7. Ces valeurs sont obtenus en effectuant le calcul de la détermination des paramètres de dissolution à partir de l'ensemble des points de l'expérience. Ces valeurs moyennes permettent d'envisager une simplification

## CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

dans le code de calcul aux éléments finis utilisé dans le chapitre 4 sans modifier de manière significative les résultats, avec un seul jeu de constante de dissolution c'est-à-dire sans avoir à implémenter la seconde cinétique de dissolution et introduire le changement de régime en fonction de l'avancement de la réaction (écart par rapport à la saturation).

Une dernière remarque, les taux de dissolution sont obtenus via des essais utilisant de l'eau pure. Ce facteur est une source importante de surestimation de la dissolution par rapport aux conditions naturelles. Ainsi une valeur de l'ordre de  $9.10^{-2} \text{ mol.m}^{-2}.\text{sec}^{-1}$ , représente une masse de presque 490 tonnes de gypse dissous en une année soit un volume moyen pour une densité de  $2300 \text{ kg.m}^{-3}$  de  $212 \text{ m}^3$ . Cette quantité n'est pas représentative d'une dissolution réaliste qui met en jeu des eaux météoriques qui ont précédemment percolé ou ruisselé sur des surfaces qui entraîne leur minéralisation parfois forte. (Zaier, 2021) donne une estimation d'un facteur 7 à 8 entre de l'eau pure et de l'eau d'un aquifère de Seine-Saint-Denis (93).

### 4) Effet de la température sur la cinétique de dissolution

Dans cette seconde partie, l'effet de la température sur les vitesses de dissolution et les constantes de réaction est abordé. La température est un facteur influençant la vitesse de dissolution du point de vue thermodynamique mais également la solubilité du gypse d'après la littérature (chapitre 1.2). Aussi des mesures de dissolution sur poudre sont effectuées à 25, 30 et 35°C pour la classe granulométrique [0,2-0,5] mm avec une vitesse de 300 tpm.

Le taux de dissolution « moyen »  $\tau$  est utilisé ainsi que la loi d'Arrhenius (éq 3.C.2) qui permet de déterminer l'énergie d'activation ( $E_a$ ) nécessaire à une réaction chimique.

$$\frac{d \ln k}{dT} = \frac{E_a}{RT^2} \quad (\text{éq 3.C.2})$$

avec constante de vitesse, température en K (kelvin), dérivée du logarithme népérien du coefficient de vitesse par rapport à la température ; constante universelle des gaz parfaits (en joule par mole et par kelvin) ; (énergie d'activation d'Arrhenius donnée en  $\text{J.mol}^{-1}$  (en joule par mole).

Lorsque cette énergie est inférieure ou égale à  $20 \text{ kJ.mol}^{-1}$  (Casey, 1987), alors la dissociation est dominante. Pour rappel, la dissociation est la séparation en molécule plus petites (ici des ions) par rupture d'une liaison chimique. Ce phénomène est souvent réversible. Pour des valeurs supérieures, le régime de dissolution sera mixte ou dépendant du transport (Tableau 48).

**Tableau 48 Énergie d'activation de la dissolution du gypse dans l'eau. Modifié d'après Zaier, 2021**

taux de dissolution contrôlé par :	Température (°C)	$E_a$ ( $\text{kJ.mol}^{-1}$ )	Référence
dissociation	0 - 40	15,5 - 29,7	Karshin et Grigoryan, 1970
dissociation-transport ou transport	5 - 25	46 -52	Lebedev and Lekhov, 1989
	5 - 25	30 45	Lebedev, 2015
	5 - 23	45,2	James and Lupton, 1978
	10 -30	40,2	Liu et Nancollas, 1971
	10 - 20	32,1 - 44,3	Zaier, 2021

Ainsi l'énergie d'activation est obtenue à partir de la régression linéaire établie à partir d'essai de dissolution à 25, 30 et 35°C. La pente de la régression linéaire est calculée à partir de la courbe (logarithme de la vitesse de dissolution) en fonction de  $1/T$ . Les résultats obtenus sont synthétisés sur la (Figure 161) et les énergies d'activation sont rassemblées dans le Tableau 49.

### CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

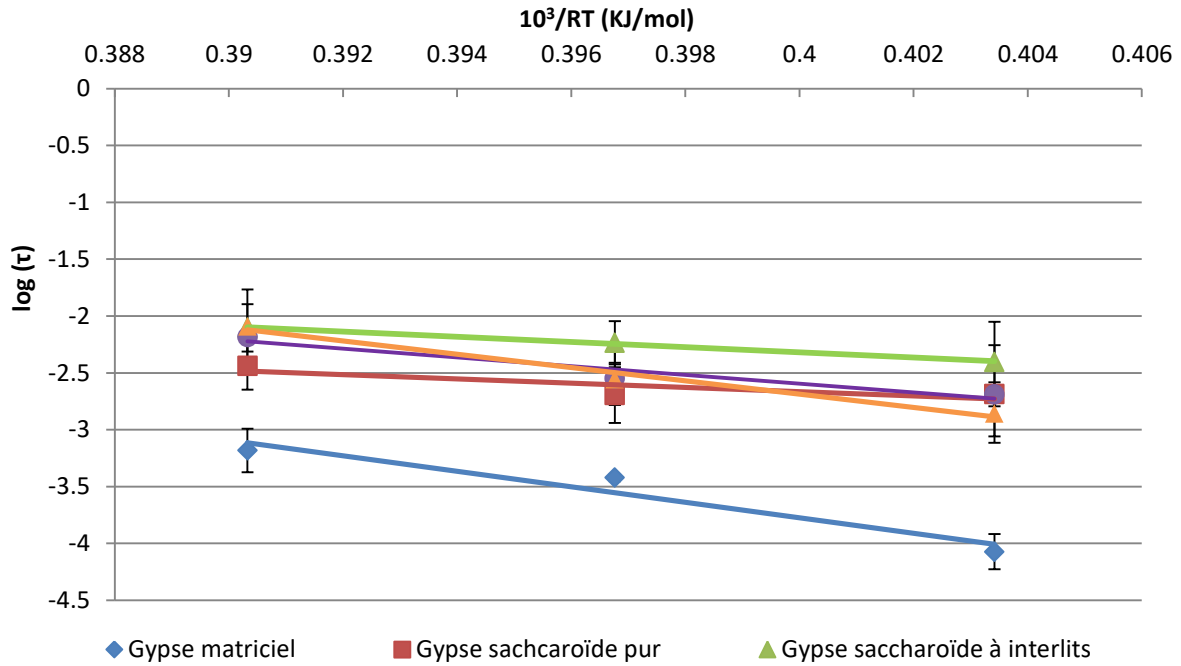


Figure 161 Diagramme d'Arrhenius à partir des points de mesures de dissolution en batch avec une vitesse d'agitation de 300 tpm pour 25, 30 et 35°C.

Les valeurs obtenues pour les faciès saccharoïdes tendent à démontrer que la dissolution est contrôlée par le phénomène de dissociation, notamment pour le gypse saccharoïde pur ( $7,9 \text{ kJ.mol}^{-1}$ ). La dissolution des autres faciès est quant à elle gouvernée par un régime mixte. Les résultats compris entre  $38,6$  et  $68,2 \text{ kJ.mol}^{-1}$  sont cohérents avec la littérature, quoique légèrement supérieures pour les faciès matriciels et fer de lance. De plus les mesures sont faites dans une gamme de température plus importante et pour une vitesse d'agitation supérieure aux conditions de test de la littérature (50 tpm par exemple pour Zaier, 2021). Or, l'augmentation de la vitesse tend à réduire l'épaisseur de la couche limite et à favoriser le contrôle par le transport, d'où des valeurs plus importantes obtenues dans la présente étude. En revanche, les faciès saccharoïdes étudiés présentent des valeurs qui indiqueraient un régime mixte à la limite du contrôle par la dissociation (autour de  $20 \text{ kJ.mol}^{-1}$ ).

Tableau 49 Énergies d'activation obtenues à partir des courbes de dissolution du gypse à 300 tpm et 25, 30 et 35°C.

Facies de gypse	$E_a$ ( $\text{kJ.mol}^{-1}$ )	Équation de la régression linéaire	$R^2$
gypse matriciel	68,2	$-68,2x+23,6$	0,93
gypse saccharoïde pur	18,8	$-18,8x+4,9$	0,90
gypse saccharoïde à interlits	22,8	$-22,8x+6,8$	0,99
gypse albastroïde	38,6	$-38,6x+12,9$	0,99
gypse fer de lance	58,5	$-58,5x+20,7$	0,98

En conclusion, ces résultats viennent conforter le régime mixte de dissolution du gypse. Les calculs par régression linéaire permettent de définir une énergie d'activation et de calculer par extrapolation la valeur de cette énergie pour une température donnée et ce pour tenir compte des variations thermiques dans les sols en fonction de la profondeur. Intégrer l'effet de la température dans le code de calcul est ainsi facilité notamment pour les modèles numériques d'un aquifère soumis à une élévation de température (sous l'effet de déchets radioactifs, de système géothermique de surface ou de profondeur, de canalisation d'eau,...).

5) Effet de la vitesse d'agitation sur la cinétique de dissolution

Cette sous-partie présente l'effet de la vitesse d'agitation de la suspension de poudre de gypse au cours de l'essai de dissolution utilisé pour calculer les constantes de dissolution. Les mesures sont réalisées à 150, 300 et 450 tpm à 30°C avec la classe granulométrique [0,2-0,5] mm. La littérature (chapitre 1.B) présente ce facteur comme un accélérateur de la dissolution sans modifier la solubilité du gypse. En effet, en renouvelant de plus en plus rapidement l'eau aux abords des surfaces des particules de gypse en cours de dissolution, l'équilibre peut être atteint de plus en plus rapidement (Tableau 50).

Tableau 50 Détermination des ordres chimiques de réactions à 30°C pour différentes vitesses d'agitations

		gypse matriciel	gypse saccharoïde pur	gypse saccharoïde à interlits	gypse albastroïde	gypse fer de lance
150 tpm	n <sub>1</sub>	1.8 +/- 0.1	1.5 +/- 0.0	1.3 +/- 0.33	1.6 +/- 0.2	1.4 +/- 0.1
	n <sub>2</sub>	4.8 +/- 0.6	2.6 +/- 0.4	3.3 +/- 1.1	4.9 +/- 0.4	3.5 +/- 0.4
	n	1.4 +/- 0.1	1.4 +/- 0.1	2.1 +/- 0.2	2.4 +/- 0.9	3.3 +/- 0.2
300 tpm	n <sub>1</sub>	1.2 +/- 0.0	1.6 +/- 0.2	1.4 +/- 0.1	1.6 +/- 0.1	1.5 +/- 0.1
	n <sub>2</sub>	4.2 +/- 0.7	3.3 +/- 0.4	3.3 +/- 0.8	3.4 +/- 1.0	3.6 +/- 0.0
	n	2.0 +/- 0.0	2.3 +/- 0.2	3.0 +/- 0.0	2.6 +/- 0.3	2.9 +/- 0.1
450 tpm	n <sub>1</sub>	1.6 +/- 0.1	1.7 +/- 0.1	1.6 +/- 0.2	1.5 +/- 0.1	1.5 +/- 0.1
	n <sub>2</sub>	4.1 +/- 0.7	3.2 +/- 1.2	2.3 +/- 0.3	2.3 +/- 0.5	2.8 +/- 0.2
	n	2.6 +/- 0.6	2.7 +/- 0.7	2.7 +/- 0.3	2.3 +/- 0.5	2.8 +/- 0.2

Les résultats de l'effet de la vitesse sur le taux de dissolution moyen  $\tau$  des faciès de gypse étudiés sont synthétisés dans la Figure 162 et le Tableau 51.

Il est possible de déterminer le taux de dissolution à une vitesse d'agitation donnée pour une température de 30°C par extrapolation à partir des équations de régression linéaire dans le Tableau 51. Il est également possible de définir le taux de dissolution pour une vitesse nulle ou très lente  $\tau_0$  (il s'agit de l'ordonnée à l'origine des équations de régression linéaire). Cette valeur permet de caractériser une vitesse de dissolution se rapprochant des écoulements lents de percolation des eaux météoriques dans des massifs gypseux naturels.

La vitesse de rotation (en tpm) peut être convertie en vitesse linéaire à partir du rayon de la pale d'agitation. Ce rayon de 1 cm permet de convertir les vitesses de rotation (150, 300, 450 tpm) en vitesses linéaires valant respectivement 0,16, 0,31 et 0,47 m.s<sup>-1</sup> selon la formule :

$$v = w * r \tag{éq 3.C.3}$$

Où w, la vitesse angulaire (rad/s), v la vitesse linéaire (m/s) et r, le rayon (m).

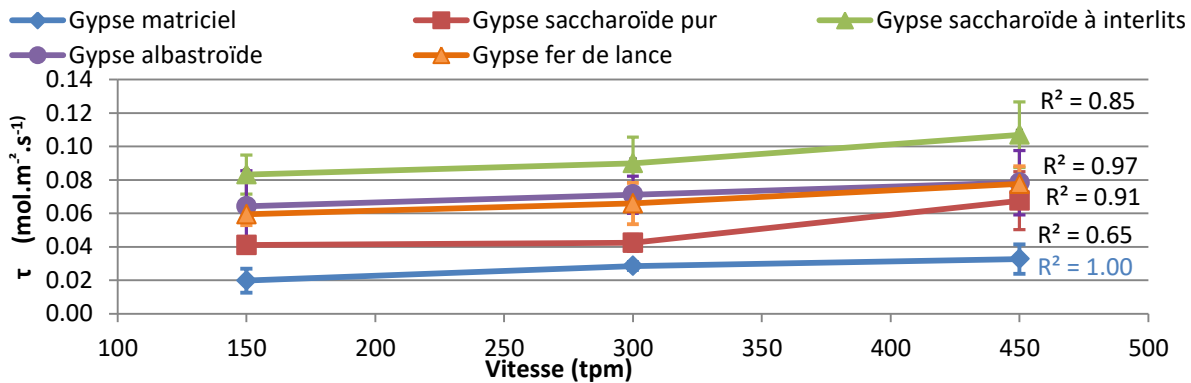


Figure 162 Effet de la vitesse de rotation sur le taux de dissolution des faciès de gypse.

## CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

Les équations de pentes de ces courbes sont regroupées dans le Tableau 51. Le  $\tau_0$  représente le taux de dissolution pour une vitesse nulle. Il est estimé selon le faciès de gypse considéré de l'ordre de 1 à  $7.10^{-2}$  mol.m<sup>2</sup>.s<sup>-1</sup>. L'effet de la vitesse de rotation, qui correspond au paramètre a de l'équation  $a \cdot \ln(x) - b$  de la courbe de tendance est représenté par le symbole  $\tau_v$ . Il indique l'effet de l'augmentation de la vitesse d'agitation sur la vitesse de dissolution et est d'environ de 0,01 à 0,02 mol.m<sup>2</sup>.s<sup>-1</sup> par tpm supplémentaire. L'effet est similaire lorsque la vitesse est exprimée en m/s.

**Tableau 51 Taux de dissolution des différents faciès de gypse à 30°C en fonction de la vitesse de rotation.  $\tau_0$  : taux de dissolution pour une vitesse nulle.  $\tau_v$  : effet de l'accélération sur le taux de dissolution**

	$\tau_0$ (en vitesse rotative) (mol.m <sup>2</sup> .sec <sup>-1</sup> )	$\tau_0$ (en vitesse linéaire) (mol.m <sup>2</sup> .sec <sup>-1</sup> )	$\tau_v$ (mol.m <sup>2</sup> .sec <sup>-1</sup> )
Gypse matriciel	0.09	0,04	0,011 ln(x)
Gypse saccharoïde pur	0.07	0.08	0,022 ln(x)
Gypse saccharoïde à interlits	0.021	0.012	0,020 ln(x)
Gypse albastroïde	0.001	0.09	0,013 ln(x)
Gypse fer de lance	0.021	0.09	0,016ln(x)

Les vitesses rencontrées ici restent bien évidemment largement supérieures à ce qui peut être observé dans un milieu naturel non fissuré. Charles et al. (1993) estime la vitesse d'écoulement dans le gypse en condition naturel à  $1.10^{-9}$  m.s<sup>-1</sup>. À cette vitesse, le taux de dissolution serait de l'ordre de  $1.10^{-11}$  mol.m<sup>2</sup>.sec<sup>-1</sup>.

### 6) Effet de la granulométrie

La variation de la taille des grains de gypse de la poudre testé en suspension au cours des essais de dissolution (voir BET) entraîne une variation de la surface spécifique. Cette évolution de la surface réactive impacte la cinétique de dissolution en modifiant le nombre de sites disponibles susceptibles de subir une dissociation. La variation du taux de dissolution moyen a été observée pour des essais de dissolution en batch sur 2 granulométriques, soit [0-0,2] et [0,2-0,5] mm, à des vitesses d'agitation de 150 et 300 tpm à 30°C (Figure 163). L'équation générique 3.C.4 rappelle de quelle manière le taux de dissolution est relié à l'avancement de la réaction (Jeschke et al., 2001b).

$$\tau = \frac{V}{S_s} \frac{dC}{dt} \quad (\text{éq 3.C.4})$$

Où  $\tau$  est le taux de dissolution (mol.m<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>),  $S_s$  est la surface spécifique (m<sup>2</sup>),  $V$  est le volume réactionnel (m<sup>3</sup>),  $dC$  la concentration de calcium en solution à un instant donné (mol/L),  $t$  le temps (s).

Les échantillons testés en dissolution à la vitesse de 150 tpm et broyés à 0,2 mm présentent tous un taux de dissolution moyen ( $\tau$ ) autour de 0,02 mol.m<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>. L'augmentation de la vitesse d'agitation double à minima, la vitesse de dissolution pour les faciès albastroïdes, saccharoïdes purs et à interlits alors que les faciès matriciels et fer de lance sont peu impactés.

Les échantillons fins (< 0,2 mm) présentent tous des taux de dissolutions inférieurs à celui mesuré sur la classe granulométrique plus grossière, ce qui apparaît cohérent avec l'équation 3.C.4. Ainsi, la diminution de la taille des grains augmente le taux de dissolution. L'on observe également que les taux de dissolution sont légèrement plus importants pour les faciès albastroïdes et fer de lance, soit les faciès plus compacts. Ils sont également plus sensibles à la

### CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

taille des éléments utilisés. Ces faciès disposent donc de structures (des sites d'initiations) qui favorisent la dissolution par rapport aux faciès de texture plus granulaires. Ces sites pourraient se localiser au niveau des plans de clivage bien développé sur ces faciès (d'où l'aspect d'empilement) et qui ont été décrit au microscope (Chapitre 3.A.II.1).

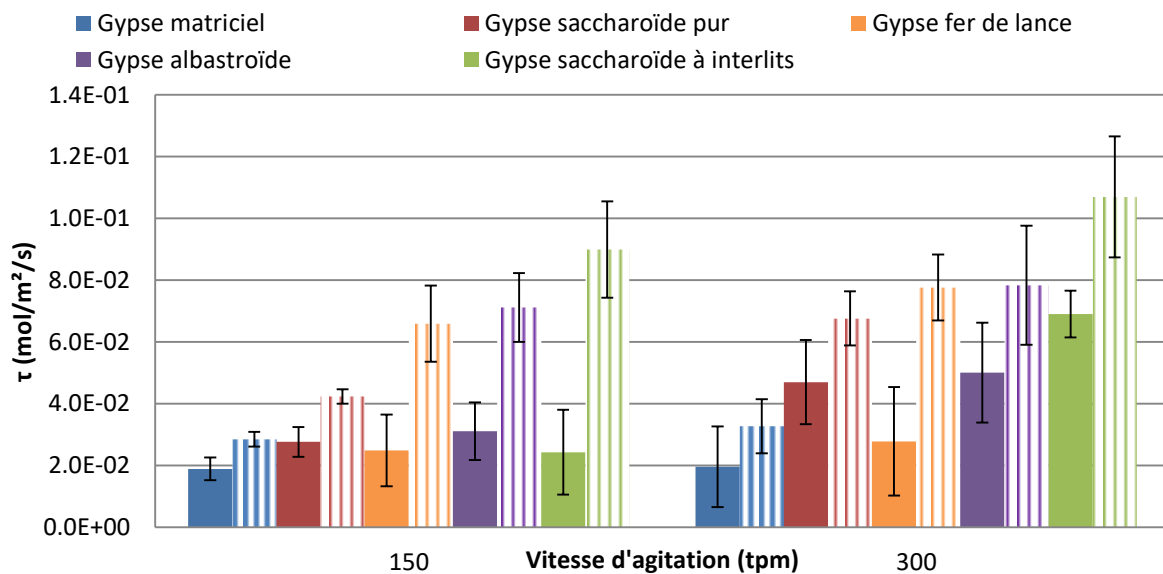


Figure 163 Effet de la granulométrie des grains de gypse sur le taux de dissolution moyen à 30°C. Barre pleine : grains inférieurs à 0,2 mm, barre hachurée : grains entre 0,2 et 0,5 mm.

**Synthèse :** la cinétique de dissolution est abordée à partir d'essais sur poudre mise au contact d'eau pure. La double cinétique de dissolution du gypse est mise en évidence avec des valeurs de l'ordre de  $n_1 = 1,5$  et  $\tau_1 = 1,8 \cdot 10^{-3} \text{ mol.m}^{-2}.\text{sec}^{-1}$  et  $n_2 = 3$  pour un  $\tau_2 = 0,3 \text{ mol.m}^{-2}.\text{sec}^{-1}$  à  $25^\circ\text{C}$  et 300 tpm. Afin d'introduire ce paramètre cinétique dans la modélisation numérique présentée dans le chapitre 4, un taux de dissolution et un ordre de chimique de réaction globale sont considérés suivant l'approche proposée par Guo et al., (2016).

Après les tests menés sur les différents faciès de gypse, la solubilité ne semble pas affectée par le faciès contenant plus ou moins de phases secondaires et d'impureté (Sr, Ba...) avec une concentration de saturation de  $16,1 \text{ mmol.L}^{-1}$ . Le taux de dissolution apparaît quant à lui influencé par le faciès de gypse considéré mais de manière minime avec des valeurs de même ordre de grandeur pour l'ensemble des faciès étudiés. Le gypse matriciel apparaît légèrement moins soluble que les autres faciès étudiés avec un  $\tau$  de  $1,7 \cdot 10^{-2} \text{ mol.m}^{-2}.\text{sec}^{-1}$  contre  $6 \text{ à } 9 \cdot 10^{-2} \text{ mol.m}^{-2}.\text{sec}^{-1}$  pour les autres faciès.

Cette différence s'explique par l'énergie d'activation plus importante de ce faciès (68 kJ/mol). Les énergies d'activations des faciès saccharoïdes plus faibles (18,8 et 22,8 kJ/mol) justifient quant à elle leurs taux de dissolutions plus développées vis à vis du faciès matriciel. Les gypses albastroïdes et fer de lance ont quant à eux des énergies d'activations de 38,6 et 58,5 kJ/mol mais des taux de dissolutions supérieurs au gypse matriciel. Cet écart peut s'expliquer par une densité de site d'initiation de la dissolution supérieur, ce qui peut compenser en partie l'énergie d'activation plus élevés que pour les faciès saccharoïdes. Ces 2 faciès disposent en effet de taux de dissolution de même ordre que les faciès saccharoïdes. Cette quantité de site supplémentaire pourrait être localisée aux niveaux des plans de clivages, où la présence d'altérations apparaît plus marquée au microscope optique. Ces questions bien qu'intéressantes n'ont pas été investigués pour ne pas s'éloigner de l'objectif principal qui est le développement d'un modèle numérique, ces expériences servant à l'obtention des paramètres nécessaires de dissolution.

L'augmentation de la température agit sur la cinétique de dissolution du gypse comme un amplificateur et ceux quelques soit le faciès considéré. La détermination de l'énergie d'activation permet de pouvoir déterminer le taux de dissolution pour une température donnée. Il apparaît également que le gypse saccharoïde (les 2 faciès) est principalement contrôlé par le régime de transport tandis que les autres faciès avec des valeurs plus fortes sont dans des régimes mixtes (réaction-transport). Ces géométries sphériques des gypses saccharoïdes doivent favoriser une régression plus homogène des grains et ralentissent le changement de régime associé à la double couche. La présence d'hétérogénéités ne pouvant être retenues car le faciès saccharoïdes à interlits est concerné également.

L'investigation de la vitesse d'agitation (150, 300 et 450 tpm) à  $25^\circ\text{C}$  permet de définir l'effet de la vitesse sur la cinétique de dissolution et par régression un taux de dissolution pour une vitesse nulle (de l'ordre de  $1 \text{ à } 7 \cdot 10^{-2} \text{ mol.m}^{-2}.\text{sec}^{-1}$ ). Suivant la théorie de la double couche, le taux de dissolution et le régime (transport et/ou réaction) est en partie conditionnée par l'épaisseur de la couche limite (Colombani, 2008). La pente de la courbe obtenue permet de définir pour une vitesse donnée le taux de dissolution correspondant. L'effet de la vitesse (en m/s) se définit ainsi par coefficient de de  $0,06 \text{ mol.m}^{-2}.\text{sec}^{-1}$ .

La granulométrie affecte quant à elle la cinétique de réaction notamment via la surface spécifique. La réduction de la granulométrie entraine de manière générale une augmentation de la surface spécifique ( $\text{g.m}^{-2}$ ), mais pas la solubilité pour un jeu de conditions données. L'ensemble de ces résultats est cohérent entre eux et avec la littérature en termes d'ordre de grandeur. Il est toutefois à rappeler que ces essais sont effectués dans de l'eau pure et que les taux de dissolution obtenus sont surestimés par rapport aux conditions naturelles



## II. Évolution des surfaces de dissolution

Les essais de dissolution sur poudre permettent de déterminer les paramètres de la dissolution du gypse mais sans observer l'évolution de la surface du matériau. Les précédentes mesures sont globale et donnent peu d'information sur les processus locaux. L'apparition de chemins préférentiels (ou digitations) lors des essais de percolation a initié une réflexion quant à la localisation des points d'initiation de ces conduits et à la cause de ces chemins. On peut supposer qu'une hétérogénéité locale du matériau gypseux (en termes de variation granulométrique, de densité d'insolubles, de taille de pores...) est à l'origine de ce comportement. Afin d'étudier l'évolution des surfaces d'échantillons massifs de gypse soumis à la dissolution, des essais de dissolution sur des disques de gypse polis ont été mis en place ainsi que des essais de dissolution sur des pavés (Figure 164). Ces essais permettent de suivre la surface des échantillons à l'aide d'un microscope numérique à profondeur de champ.

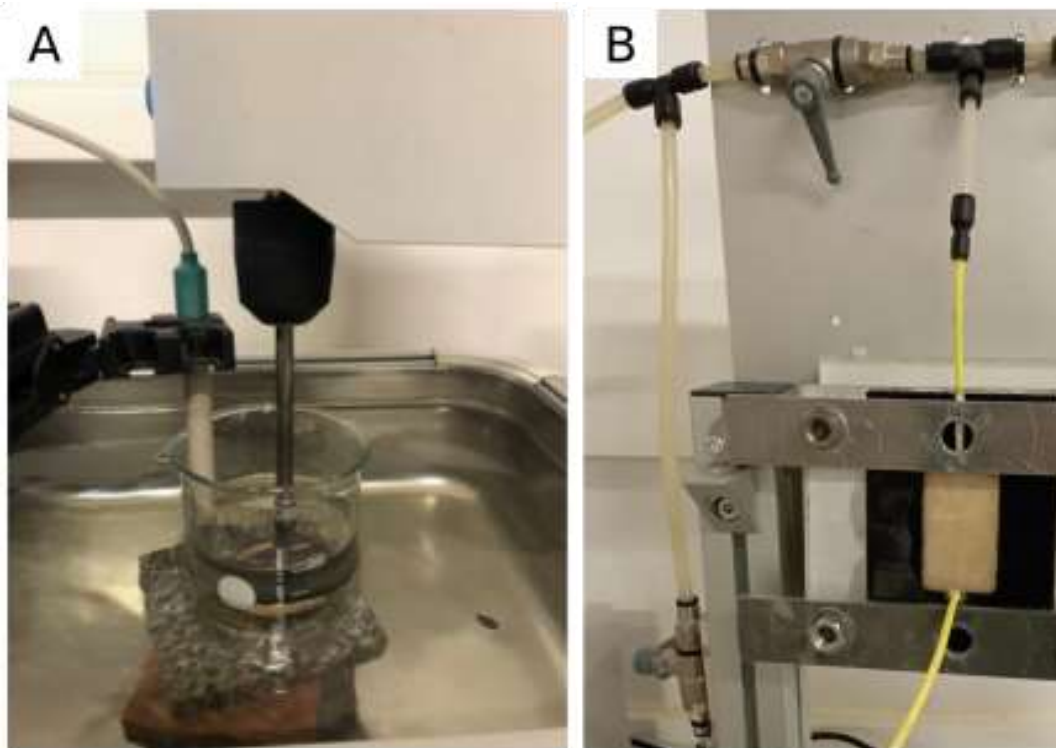


Figure 164 Illustration des montages expérimentaux pour le suivi des surfaces d'échantillons massifs de gypse soumis à la dissolution. A : montage de l'essai de dissolution sur disque tournant. B : montage de l'essai de dissolution sur pavé.

### 1) *Essai de dissolution sur disque*

#### a) Taux de dissolution

L'essai de dissolution sur disque est un essai fréquemment rencontré dans la littérature (Zaier, 2021; Barton and Wilde, 1971; Lebedev and Lekhov, 1989; Jeschke et al., 2001b). Il existe deux variantes à cet essai : l'une où l'échantillon est fixé au système en rotation soit une pale d'agitation (Zaier, 2021; Barton and Wilde, 1971) et l'autre où l'échantillon est déposé dans le fond d'un récipient avec un système d'agitation de la solution placé au-dessus (Lebedev et Lekhov, 1989). Lors de nos essais, il a été choisi de déposer l'échantillon en fond de réacteur rempli d'eau initialement pure.

L'évolution de la surface du disque soumis à l'altération est observée alors que la mesure de la conductivité de la solution au cours de l'essai permet de définir la cinétique de dissolution de la surface en utilisant une méthode de calcul similaire à celle appliquée lors de la

## CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

dissolution des poudres (utilisation des mêmes équations de conversion de la conductivité en concentration). Les essais sont ainsi réalisés suivant le montage décrit dans le chapitre 2. La température est fixée par un bain marie à 25°C et les vitesses de rotation des disques sont comprises entre 30 et 200 tpm. La surface ‘géométrique’ du gypse exposée est de 20 cm<sup>2</sup>, soit la surface d’un disque de rayon 2,5 cm et le volume de solution est fixé à 300 mL (le système est maintenu clos pour limiter l’évaporation en cours d’essai). Les taux de dissolution obtenus et les ordres chimiques de réaction sont synthétisés dans la Figure 165 et le Tableau 52.

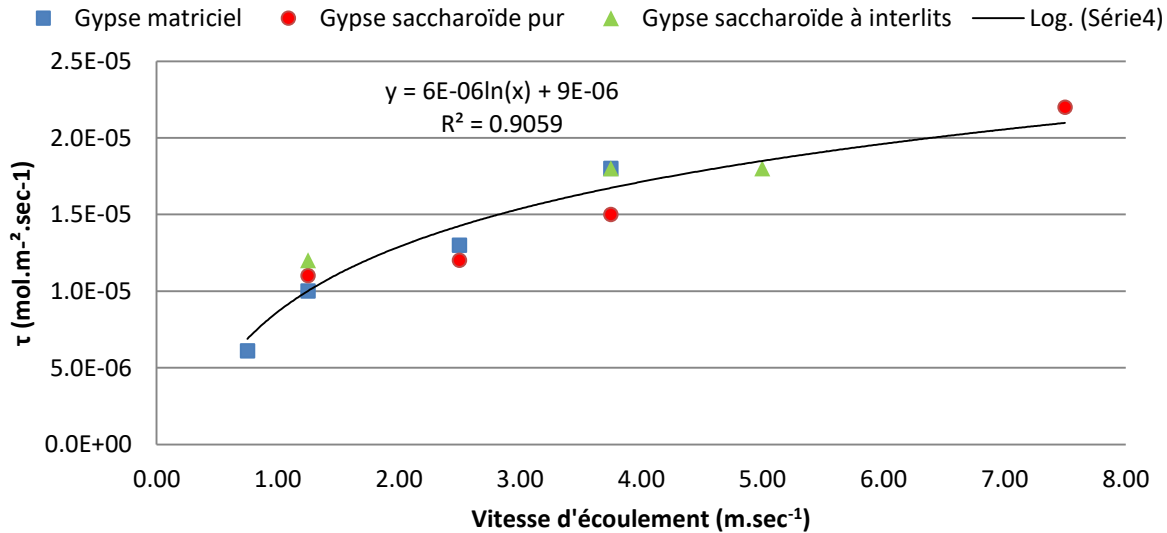


Figure 165 Essai de dissolution sur disque en rotation : taux de dissolution moyen en fonction de la vitesse de rotation de la pale convertie en vitesse linéaire par l'équation 3.C.2

Les taux de dissolution moyens calculés sont compris entre 0,006 et 0,022 mmol.m<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> pour l'ensemble des mesures effectuées avec des R<sup>2</sup> supérieurs ou égale à 0,9. Les résultats obtenus sont du même ordre que les résultats de la littérature. (Zaier, 2021) donne des valeurs de 0,016 à 0,034 mmol.m<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> selon le faciès de gypse considéré à 15°C. L'ordre chimique de la réaction est également en accord avec des valeurs autour de 1. Ces valeurs sont demême ordre de grandeur que celles obtenues pour les essais de dissolution sur poudre qui donnent des valeurs de l'ordre de 10<sup>-2</sup> mol.m<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>. Comme pour les essais batch, le changement de faciès ne modifie pas de manière importante le taux moyen de dissolution ( $\tau_m$ ) qui est de l'ordre de 10<sup>-5</sup> mol.m<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>. Par extrapolation, le taux de dissolution à vitesse nulle est estimé à 6.10<sup>-6</sup> mol.m<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>. Si on considère tous les point de mesures quel que soit le faciès, une équation (éq 3.C.5) est en mesure d'ajuster le taux de dissolution en fonction de la vitesse d'agitation avec un R<sup>2</sup> correct de 0.90 soit :

$$\tau = 6.10^{-6} \ln v + 9.10^{-6} \quad (\text{éq 3.C.5})$$

Ces résultats expérimentaux permettent de définir de manière précise les paramètres de la dissolution en fonction de la vitesse d'écoulement du fluide dans le modèle développé et appliqué dans le chapitre 4. Les paramètres obtenus sur disques se rapprochent potentiellement plus de la réalité que les paramètres mesurés à partir de la dissolution d'une poudre. La différence majeure est reliée à la surface spécifique du matériau qui varie très fortement entre le début et la fin de l'essai dans le cas de l'essai sur poudre. Alors que dans le cas de l'essai de dissolution sur disque de gypse massif, la surface réactive augmente au cours de l'essai compte tenu de l'effet de rugosité. Si les surfaces spécifiques déterminées par BET montrent une diminution avec l'augmentation de la taille des éléments, il est plus complexe de calculer/mesurer l'évolution de la surface spécifique offerte à la dissolution au niveau de la surface des disques de gypse.

## CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

Tableau 52 Taux de dissolution en fonction de la vitesse à 25°C pour des essais de dissolution sur disque

Échantillon	Vitesse de rotation (tpm)	N	$\tau$ (mol.m <sup>-2</sup> .s <sup>-1</sup> )	$\tau_0$ (mol.m <sup>-2</sup> .s <sup>-1</sup> ) <i>Vitesse nulle</i>	$T_v$ (mol.m <sup>-2</sup> .s <sup>-1</sup> ) Effet de la vitesse
Gypse matriciel	30	1.14	6.10E <sup>-06</sup>	4.0E <sup>-06</sup>	4.0E <sup>-06</sup>
	50	1.01	1.00E <sup>-05</sup>		
	100	1.07	1.30E <sup>-05</sup>		
	150	1.09	1.80E <sup>-05</sup>		
Gypse saccharoïde pur	50	0.99	1.10E <sup>-05</sup>	8.0E <sup>-06</sup>	2.0E <sup>-06</sup>
	100	1.01	1.20E <sup>-05</sup>		
	150	1.26	1.50E <sup>-05</sup>		
	300	1.14	2.20E <sup>-05</sup>		
Gypse saccharoïde à interlits	50	0.89	1.20E <sup>-05</sup>	1.0E <sup>-05</sup>	2.0E <sup>-06</sup>
	150	1.13	1.80E <sup>-05</sup>		
	200	1.11	1.80E <sup>-05</sup>		

### b) Évolution de la surface dissoute

Les disques utilisés dans l'essai de dissolution sur disque tournant ont été observés par microscopie optique (numérique) à profondeur de champ, ce qui permet des prises de vue nette même en prise en présence de surface avec une certaine rugosité de surface (la mise au point est faite en chaque point quelle que soit sa cote z et il est possible au final d'avoir une vision 3D de la surface connaissant ces cotes z).

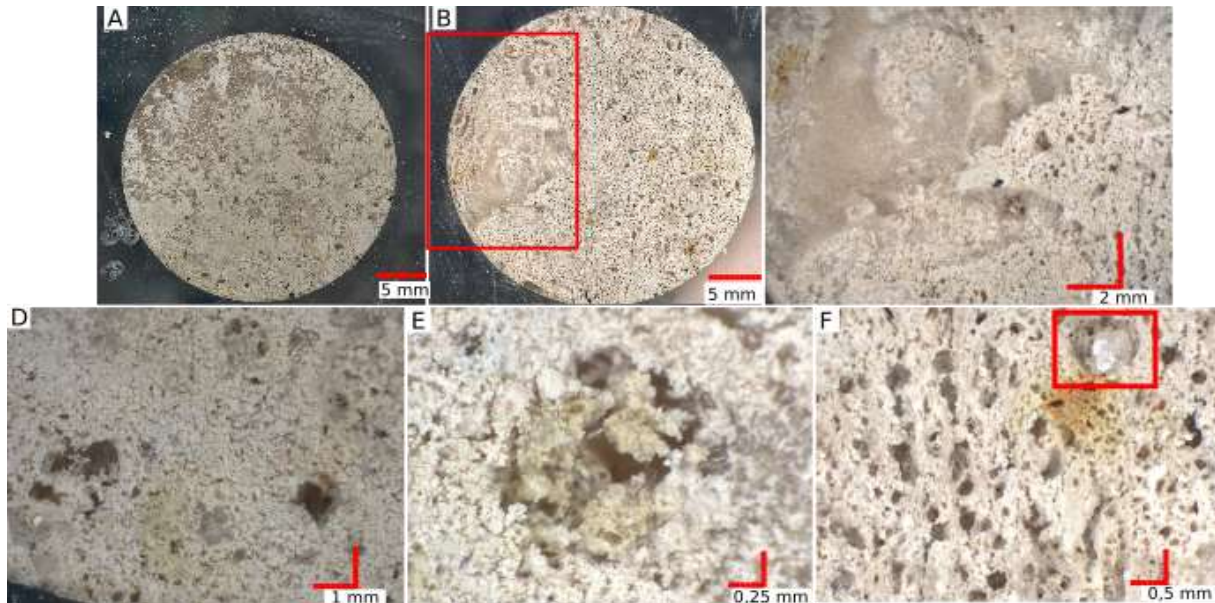


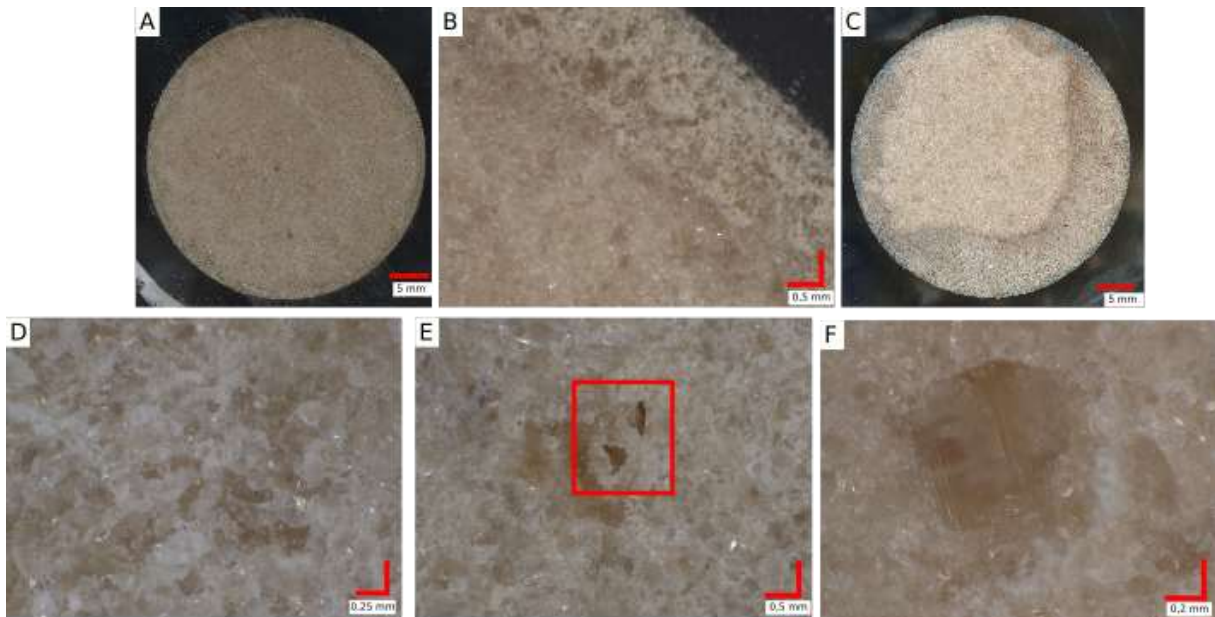
Figure 166 Effet de la dissolution sur des disques de gypse matriciel. A : disque après 24 heures à 50 tpm. B : disque après 24 heures à 150 tpm. C : zone de dissolution préférentielle. D et E : dissolution des grains de gypse millimétrique. F : résidu de gypse partiellement dissous.

La dissolution des disques de gypse matriciel affecte l'ensemble de la surface pour une vitesse de 50 tpm (Figure 166A). Avec l'accélération de la vitesse de rotation, la dissolution affecte l'ensemble de la surface de manière hétérogène. L'augmentation de la vitesse génère un effet de vortex impactant de manière privilégiée l'échantillon au droit de la pale d'agitation (Figure 166B et C). Lorsqu'elle est homogène, la dissolution affecte de manière préférentielle les

### CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

cristaux millimétriques du faciès matriciel avant de dissoudre la matrice une fois ces cristaux éliminés. (Figure 166D et E). On observe ponctuellement des résidus de cristaux de gypse non entièrement dissous encore dans leur emplacement (Figure 166F). Une explication possible de ce phénomène est la présence des plans de clivages sur les grains millimétriques comme décrit au microscope. Ces plans de faiblesse mécanique semblent constituer des points d'initiations de la dissolution de manière privilégiée. Il est décrit dans les parties précédentes de ce chapitre que les plans de clivages portent d'avantages de traces d'altérations ce qui pourraient conforter cette idée.

Le gypse saccharoïde pur à vitesse faible de rotation du fluide au-dessus du disque (50 tpm) présente une dissolution homogène sur l'ensemble de la surface (Figure 167A) avec toutefois un effet de bord limitant la dissolution sur le pourtour du disque (Figure 167B). Cet effet peut être lié à un phénomène hydrodynamique avec la résine mise en relief. Comme pour le gypse matriciel, l'accélération de la rotation entraîne un effet de dissolution hétérogène (Figure 167C) sur la surface, ce qui laisse supposer que des effets hydrodynamiques locaux et différenciés sont présents compte tenu du fluide en rotation. La dissolution n'entraîne en revanche pas de dissolution préférentielle entre la phase de liaison et les éléments granulaires. Le développement de pore peut localement être observé et la dissolution au niveau des grains suit les clivages qui sont mis en évidence via le relief des grains de gypse.



**Figure 167** Effet de la dissolution sur des disques de gypse saccharoïde pur. A : disque après 24 heures à 50 tpm. B : Effet de bord lors de la dissolution à 50 tpm. C : disque après 24 heures à 150 tpm. D : dissolution des grains de gypse. E : développement d'une porosité locale avec la dissolution. F : Dissolution d'un grain micrométrique et mise en évidence des plans de clivages

Le gypse saccharoïde à interdits présente quant à lui une dissolution non homogène dès 50 tpm de vitesse de rotation (Figure 168A, B, C). Cette dissolution est localisée de part et d'autre d'un interlit et affecte préférentiellement la partie composée de gypse. Les éléments peu solubles de l'interlit, argiles et oxydes de fer se retrouvent ainsi en relief (Figure 168D) comme des éléments non dissous et non dispersés/érodés au cours de l'essai de dissolution (même sous l'effet du fluide mis en mouvement). Les éléments insolubles comme les oxydes de fer sont ainsi mis en relief et génère des points durs protégeant le gypse sous-jacents (Figure 168F). Toutefois, la hauteur de ce relief apparaît comme inférieure à la hauteur initiale du disque. Un phénomène d'arrachement et de mobilisation a donc été mis en œuvre.

### CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

Ce qui est concordant avec les essais en percolation et la récupération de ce type d'éléments sur les papiers filtres en sortie de l'essai. Le reste de l'échantillon montre une dissolution de la masse de gypse avec une dissolution préférentielle des éléments millimétriques par rapport à la phase de liaison (Figure 168E). Les cristaux de grandes dimensions présentes des plans de clivages plus longs, plus nettes et en plus grands nombre que des grains quasi sphériques de faibles diamètres. Ces points de faiblesses mécaniques semblent également former des sites de dissolution préférentiels comme décrits pour le faciès matriciel.

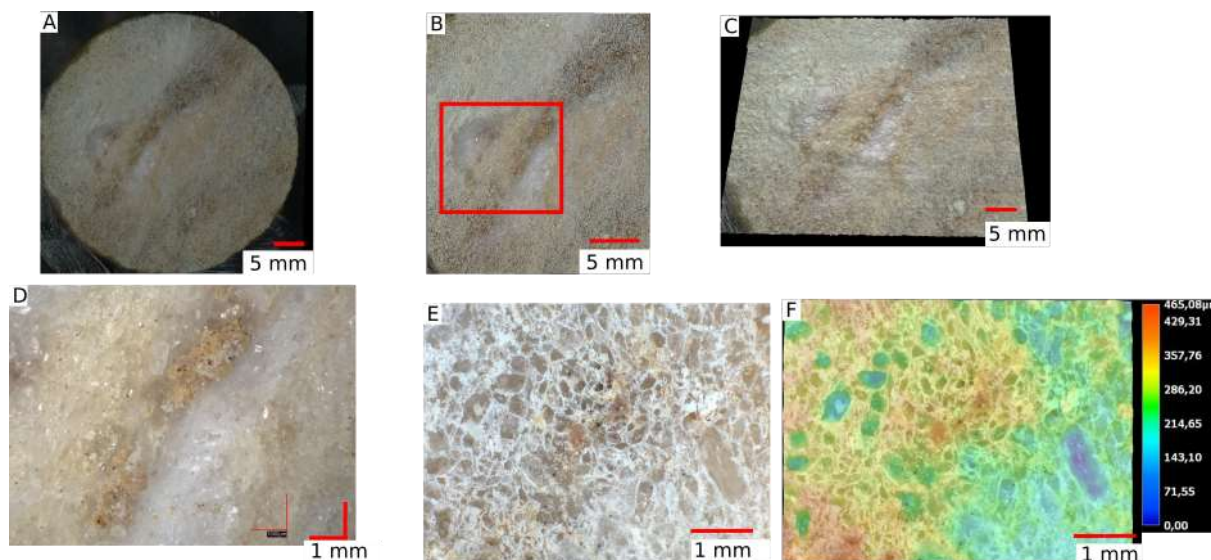


Figure 168 Effet de la dissolution par rotation sur des disques de gypse saccharoïde à interlits. A : disque après 24 heures à 50 tpm. B : Mise en évidence la dissolution préférentielle du disque C : Vue en relief de la zone dissoute de manière préférentielle. D : Mise en relief des minéraux insolubles. E : Visualisation de la dissolution des cristaux de gypses préférentiellement à la phase de liaison. F : Visualisation en fausses couleurs de la dissolution des cristaux de gypses préférentiellement à la phase de liaison.

**Synthèse :** la réalisation d'essai de dissolution sur des disques et non des échantillons granulaires directement intégrés dans le volume de fluide (essai batch) permet de définir des taux de dissolutions moins importants (de l'ordre de  $10^{-5}$  contre  $10^{-2}$   $\text{mol.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ). Il est ainsi obtenu par régression linéaire un taux de dissolution pour une vitesse nulle ( $\tau_0=4.10^{-6}$   $\text{mol.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ) d'écoulement et l'effet de la vitesse ( $\tau_v= 3.10^{-6}$   $\text{mol.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ) sur la cinétique de dissolution. L'ordre chimique de la réaction est de l'ordre de 1.

L'analyse des surfaces est limitée à la vitesse inférieure à 100 tpm par le développement d'une dissolution non homogène intervenant au-delà. Il peut toutefois être observé une dissolution préférentielle des grains de gypse millimétrique pour le faciès matriciel. Le gypse saccharoïde pur présente une dissolution homogène tandis que le saccharoïde à interlits subit une dissolution différentiel au niveau des inter stratifications d'argiles. Ces zones sont mises en relief avec une dissolution plus importante du gypse à l'interface. Ces éléments sont donc mis en relief et mobilisés par lessivage comme observé sur l'essai plaque. La présence d'interlits et d'éléments argilo-ferrugineux semblent donc favoriser la dissolution préférentielle en favorisant l'écoulement par leurs porosités macroscopiques (Tableau 28 et Tableau 36) plus développées et donc la désolidarisation des grains qui peuvent être emportés.

### III. Essai de dissolution sur plaque

Cet essai décrit dans le chapitre 2 consiste à simuler un écoulement d'eau entre une plaque de gypse poli et une plaque de plexiglass. L'écoulement a lieu dans un espace délimité sur le pourtour par une bande de néoprène. Le débit d'eau pure introduit est régulé en entrée par une pompe péristaltique et est fixé à  $5,5 \text{ mL}\cdot\text{min}^{-1}$ . Ce débit permet de maintenir la chambre de dissolution remplie d'eau sans que la pression ne soit trop forte (ce qui peut engendrer des fuites latérales).

Chaque cycle de dissolution est effectué avec un volume d'eau circulée d'environ 10L. Une fois le cycle terminé, le pavé est sorti de la chambre et est cartographié via un microscope optique (numérique) à profondeur de champ pour déterminer l'évolution des paramètres de rugosité (Sa, Sz...), comme décrit au chapitre 2. Des observations complémentaires sont effectuées pour l'interprétation des effets de l'écoulement sur l'échantillon.

#### 1. *Gypse matriciel*

Sur les pavés de gypse matriciel, la dissolution se produit préférentiellement au niveau des minéraux de gypse les plus grossiers plutôt que dans la matrice, ce qui est concordant avec l'essai sur disque (Figure 169A). L'ensemble de la surface est affectée par la dissolution comme le montre la Figure 169B qui montre l'aspect de la surface avant et après dissolution. Cette observation est faite dès le premier cycle d'essai. L'idée d'un arrachement d'une partie des éléments (érosion/arrachement de particules désolidarisées par dissolution sélective locale) ne peut être totalement exclue, cependant aucun élément insoluble n'a été récupéré avec l'eau qui sort de la chambre. De plus, des cristaux blanc translucide avec des clivages en feuillets sont observés dans les vides formés (Figure 169C et D) par la dissolution ce qui suggère une dissolution partielle de ces éléments.

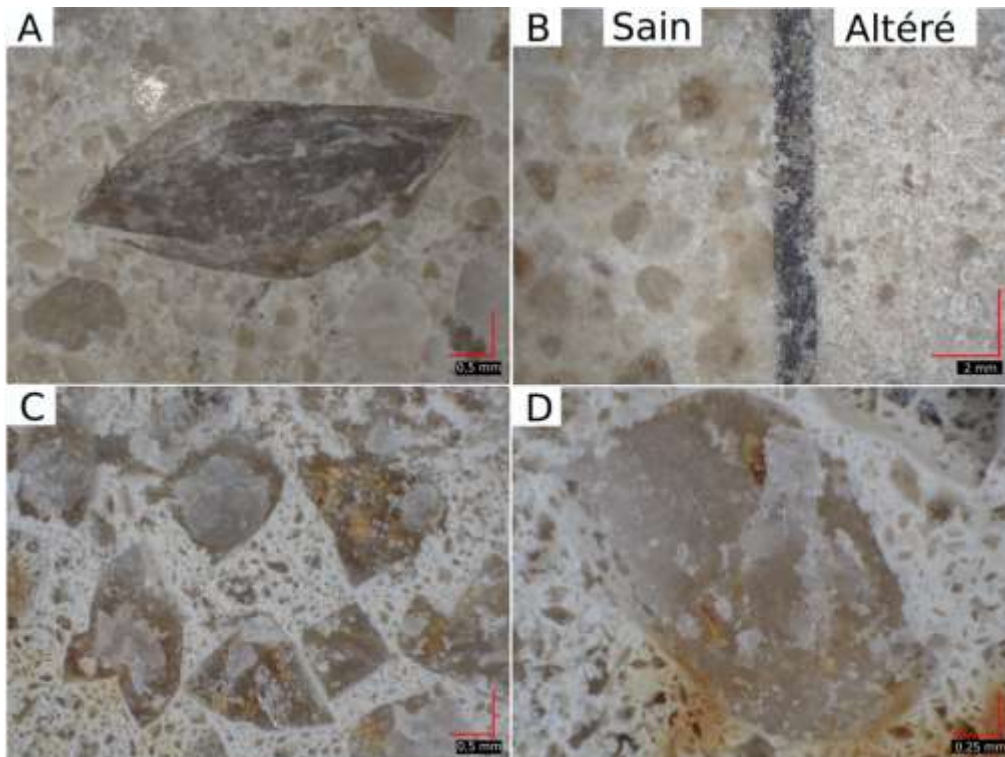


Figure 169 Observation d'un pavé de gypse matriciel avant et après essai de dissolution sur plaque. A : vue d'un cristal de gypse millimétrique avant essai. B : Visualisation de l'effet de l'écoulement sur le pavé (x20). C : Dissolution préférentielle des cristaux millimétriques (x50). D : cristal de gypse partiellement dissous (x100).

La répétition des cycles entraîne un creusement général de la surface d'essai. Ce creusement est visualisable à l'œil et est quantifiable via les paramètres de rugosité déterminés via le logiciel associé au microscope optique à profondeur de champ (Figure 170).

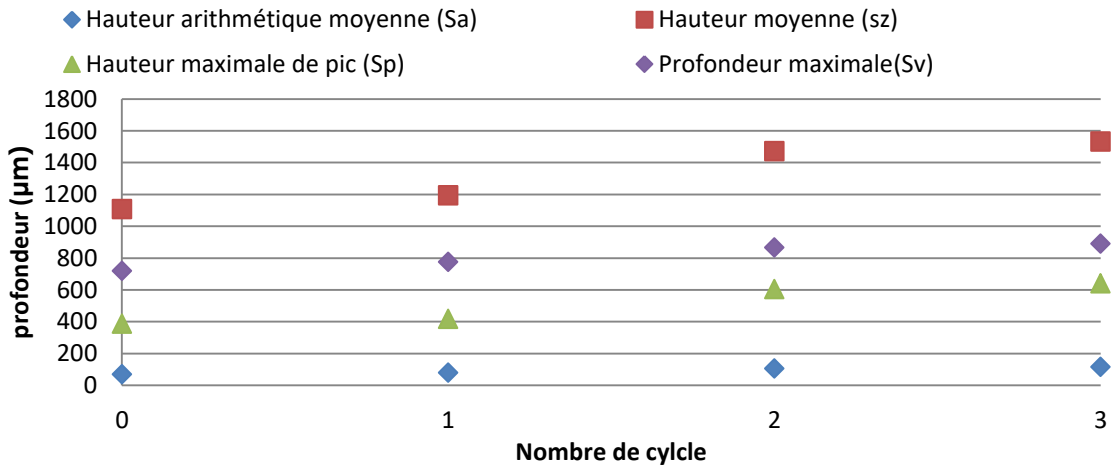


Figure 170 Évolution des paramètres définissant la rugosité pour un pavé de gypse matriciel

De manière générale, on observe une augmentation du creusement avec l'augmentation de la hauteur moyenne (sz). Pour rappel, les hauteurs sont calculées à partir du point le plus bas détecté par l'appareil. Ce paramètre traduit la distance entre le point le plus haut et le point le plus bas mesuré sur la surface de l'échantillon. Ce résultat est confirmé par les paramètres Sp et Sv qui représentent respectivement la distance au plan médian du point le plus haut et du point le plus bas. La valeur de Sv est supérieure à Sp pour l'ensemble des mesures, signe du creusement par dissolution.

Toutefois, il n'a pas été observé de chemin préférentiel sur ce faciès, ni au cours de l'essai de percolation, ni au cours de l'essai de dissolution sur plaque. La dissolution n'apparaît pourtant pas homogène sur l'ensemble de la surface avec une dissolution plus forte au niveau du point d'entrée du fluide mais cet effet lié à l'arrivée d'eau pure en un point particulier n'est pas suffisant pour amorcer une dissolution préférentielle à partir d'une hétérogénéité donnée du matériau (hétérogénéités pourtant présentes).

## 2. Gypse saccharoïde à interlits

Le nombre de cycle sur ce faciès a été limité par le passage d'une partie de l'eau au sein de la masse de gypse, ce qui a entraîné des fuites importantes. Cette circulation est possible du fait du coefficient d'imbibition capillaire important ( $50\text{g.m}^{-2}\text{.sec}^{-1}$ ) et de la présence de macropores ( $>100\ \mu\text{m}$ ) observés par porosimétrie d'intrusion de mercure pour ce faciès (voir chapitre 3.1). Les observations post essais montrent une altération en forme de sillon autour du point d'entrée d'eau (Figure 171, miniature en fausse couleur). Le débit d'injection ( $5,5\ \text{mL.min}^{-1}$ ) et l'eau sous saturée entraîne une forte récession autour de ce point. Les cycles de circulation initient également un phénomène de lessivage des zones argilo-ferrugineuses. Ce lessivage dès le premier cycle traduit la mauvaise liaison des minéraux entre eux et la possibilité d'une évolution rapide de la porosité par lessivage des éléments fins. Ce lessivage a déjà été décrit pour l'essai de percolation avec les éléments insolubles récupérés en quantité dans les chemins préférentiels en fin d'essai. En revanche, dans l'essai sur les disques les parties argileuses apparaissaient en relief. Cela est potentiellement causé à un effet de l'hydraulique. Dans l'essai sur disque, l'agitation est un mouvement rotatif sans contact direct alors que dans l'essai de plaque et de percolation, il s'agit d'un écoulement linéaire en contact direct avec la masse de gypse.

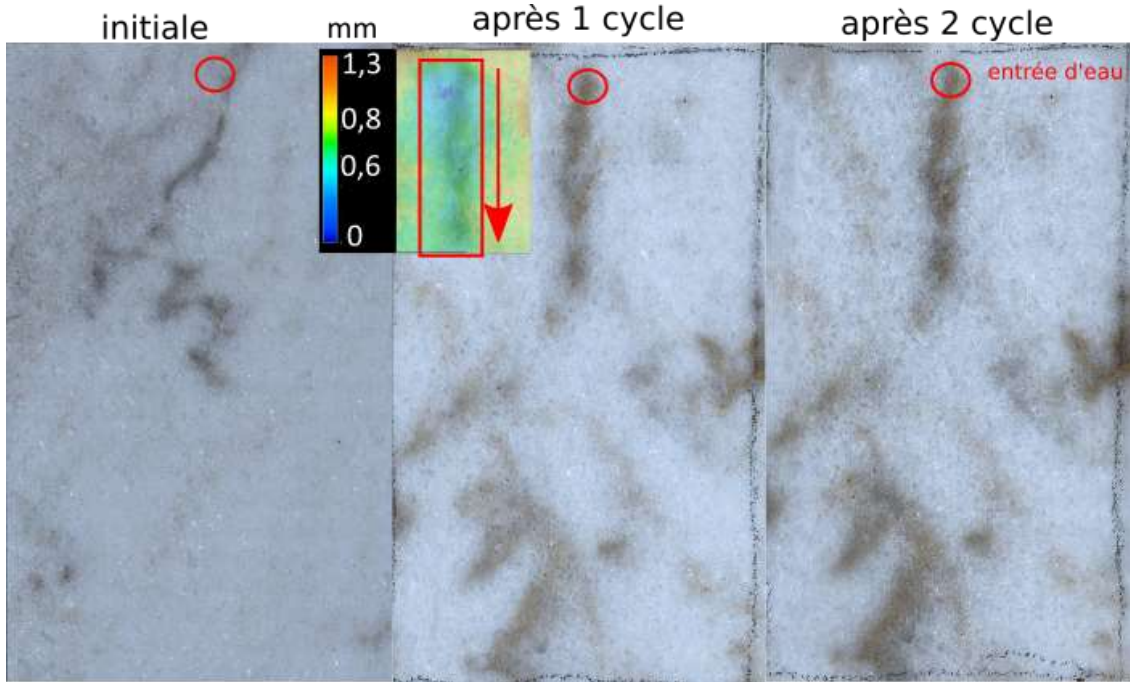


Figure 171 Évolution de la surface d'un pavé de gypse saccharoïde à interlits. En fausses couleurs : la formation d'un sillon de dissolution.

La rugosité observée sur le gypse saccharoïde à interlits tend à se réduire lors de premier cycle avant d'augmenter lors du second cycle pour l'ensemble de la surface de l'essai (Figure 172). L'évolution des caractéristiques de la surface apparait moins marquée que pour le gypse matriciel et sans variation importante des paramètres de rugosité. Les couches de matériau gypseux disparaissent de manière homogène couche par couche dans la création d'une forte texture de surface.

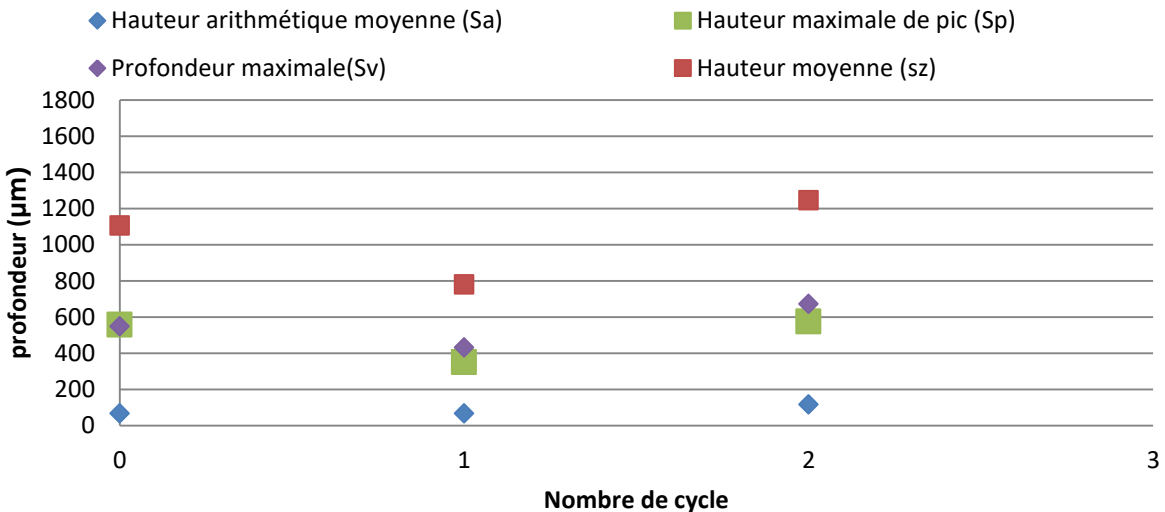


Figure 172 Évolution des paramètres définissant la rugosité pour un pavé de gypse saccharoïde à interlits

### 3. Gypse saccharoïde pur

Le nombre de cycle sur ce faciès a été limité par une dissolution rapide de la surface et le passage de l'eau sous la membrane d'étanchéité. Il en a résulté des fuites importantes. Malgré ce nombre de cycles limités, l'observation au microscope numérique permet de visualiser des traces de dissolution sur les plans de clivage des cristaux de gypse (Figure 173A) et une altération de la phase de liaison. La phase de liaison perd son aspect lisse et homogène pour prendre un aspect granulaire et s'éclaircir par rapport à sa teinte initiale (Figure 173A).



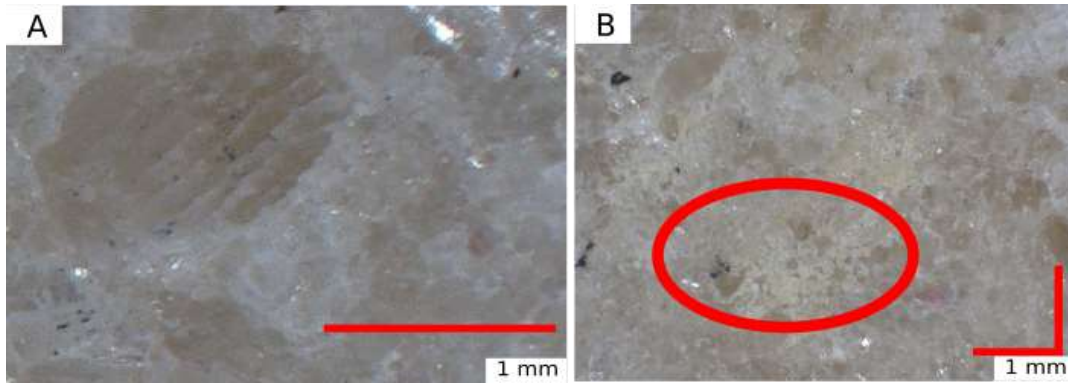


Figure 173 Observation au microscope numérique d'un pavé de gypse saccharoïde après des cycles de dissolutions. A : dissolution différentiel à partir des macles du gypse. B : évolution de la phase de liaison.

Comme pour le gypse matriciel, la dissolution est quantifiable par l'évolution des paramètres de rugosité de surface (Figure 174). Comme pour le faciès précédent, il est noté une augmentation de la profondeur de vallée et de pic par rapport à au plan moyen.

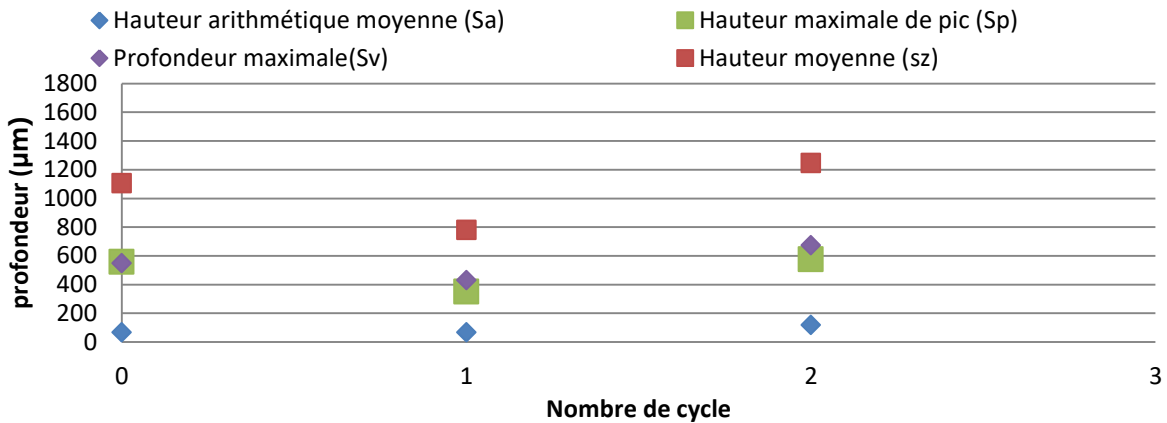


Figure 174 Évolution des paramètres définissant la rugosité pour un pavé de gypse saccharoïde pur par le microscope Keyence

**Synthèse :** Le développement de l'essai sur plaque visant à étudier l'évolution des surfaces du gypse sous dissolution a nécessité un temps important (plus d'un an). Cela a limité le nombre d'essais. L'appareil permet de réaliser des cycles de dissolutions pour des volumes d'eaux importants (10 L) avec d'observer l'évolution de ces surfaces de manières qualitatives et quantitatives avec un microscope numérique. Cet essai en testant une surface supérieure à celles des disques permet une meilleure représentativité (statistique) de l'évolution des caractéristiques (rugosité) des surfaces. L'intérêt est aussi de rapprocher le contexte hydraulique de celui d'une fissure, la plaque de plexiglass servant de seconde paroi. Mais aussi d'avoir un écoulement plutôt qu'une agitation rotative à distance. Il est ainsi pris en compte les effets d'arrachements ou de dispersion de manière plus pertinente.

Le creusement issu de la dissolution est mis en évidence mais il n'a pas été possible de déterminer un critère quant à l'initiation de chemin préférentiel. Une dissolution non homogène a pu être mise en évidence sur le gypse matriciel avec une dissolution préférentielle des cristaux millimétrique de gypse. La dissolution est moins bien visualisable sur les faciès saccharoïdes de par leurs teintes transparentes et la difficulté de distinguer nettement les pourtours des grains. Le creusement est néanmoins quantifiable par l'appareil. Les éléments secondaires (argiles, oxydes...) apparaissent mobilisables et se disséminent de manière élargis avec les cycles.

### D. Discussion des résultats partie caractérisation

La caractérisation des échantillons a permis d'étudier l'hétérogénéité du gypse et de faire le lien entre ces variations. La minéralogie semble jouer un rôle limité dans les échantillons étudiés au cours de ce travail. En effet, l'ensemble du panel étudié possède une teneur en gypse supérieur à 80% et cette teneur ne semble pas affecter la porosité ou la résistance. Ainsi, l'identification et la quantification des différentes fractions minérales permettent uniquement de conforter l'idée que le gypse est presque exclusivement le seul à se dissoudre lors de nos essais de percolations. Il peut être déploré de n'avoir pu inclure dans l'étude un faciès avec une teneur en gypse plus faible pour tester l'effet d'un réel mix minéralogique sur l'évolution du gypse.

Le gypse est régulièrement considéré comme une roche non poreuse du fait de sa faible perméabilité. Or, l'observation en lame mince montre bien la présence de ces vides et leurs connectivités, bien que le gypse fer de lance aurait mérité une analyse à une échelle plus grande afin d'être visualiser dans son entièreté. La faible perméabilité du matériau a été mesurée mais les essais de dégradation n'ont pas mis en évidence de réelle évolution de la perméabilité sur les éprouvettes considérées. Les gradients de pression utilisés ont peut-être été insuffisants. Le phénomène des chemins préférentiels a également rendu impossible la mesure de la perméabilité sur les éprouvettes les plus altérées, ce qui a donc limité le suivi aux éprouvettes les moins affectées par l'altération, et donc à des variations moins marquées de la perméabilité. Les mesures des coefficients d'imbibition capillaire, quoique de faibles valeurs ( $50 \text{ g.m}^{-2}.\text{sec}^{-1}$  au maximum) ont confirmé la connectivité de la porosité.

La relation porosité – résistance mécanique est satisfaisante et cohérente avec la littérature. À noter que la structure de la porosité est également un facteur à prendre en compte pour le gypse saccharoïde à interlits. La présence d'interlits avec une forte porosité crée des plans de faiblesse réduisant davantage la résistance mécanique, qu'avec une porosité distribuée de manière homogène. L'échantillonnage réalisé a permis de travailler sur différentes structures de porosité (mono/bimodale, micro/nanométrique...). Cela a permis de quantifier l'évolution du gypse pour ses différentes structures. Les pores de dimensions plus fines permettent une meilleure saturation du milieu poreux et retardent le développement des chemins préférentiels. D'une part parce que de dimensions plus faibles, ils nécessitent plus de temps pour s'élargir, d'autres parts parce qu'en se saturant plus rapidement compte tenu du plus faible volume d'eau, la dissolution se fait préférentiellement sur la face au contact du fluide sous saturé, où à proximité de l'interface. Les méthodes non destructives qui ont été privilégiées ont des résultats concordants et semblent indiquer une sensibilité plus forte à la fissuration de la mesure par fréquence de résonance.

La suite du programme expérimental visait à simuler l'altération d'éprouvettes de gypse et de suivre l'évolution de leurs propriétés à partir d'un banc de percolation mis au point pour cette thèse. Le principe repose sur l'application d'une pression constante en entrée du système. L'autre option aurait été d'imposer un volume constant, ce qui aurait été plus complexe à développer et mettre en place en 3 ans. Le choix de la pression a aussi été fait afin de laisser le matériau évoluer. Le système de percolation et son suivi se sont avérés opérationnel et pertinents. Une réserve peut-être émise quant à l'absence du gypse fer de lance et son écoulement trop important. Le suivi des eaux de percolations a été fait par conductimétrie de manière régulière et par ICP-AES de manière plus ponctuelle. Cette dernière méthode a révélé une solution chargée quasi exclusivement en calcium issu de la dissolution du gypse, une sonde spécifique au calcium aurait donc pu être utilisée mais n'aurait pas pris en compte l'ensemble d'un bagage élémentaire plus diversifié.

## CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

Le programme expérimental pour les 3 faciès retenus a mis en évidence l'écoulement dans le gypse ainsi que la dégradation des propriétés poromécaniques qui ont été caractérisées initialement, et ce pendant une période de 2 mois. Les résultats sont satisfaisants avec des tendances qui se dégagent nettement. Une multiplication de la répétabilité, ici de 3 par période de percolation et par faciès permettrait de conforter les résultats obtenus. L'altération amplifie les hétérogénéités initiales des éprouvettes et tend donc à donner des évolutions légèrement différentes en termes de vitesse d'altération. De même, l'apparition des chemins préférentiels génère des évolutions non homogènes des éprouvettes et complexifie l'interprétation. Ce manque de répétabilité se fait notamment sentir sur les essais de compression avec une seule éprouvette disponible par faciès et temps de percolation. Les résultats des méthodes non destructives montrent une réduction forte et rapide du module d'élasticité qui, au vu des hétérogénéités observées après percolation, devrait être conforté. Afin de quantifier de manière plus localisée l'évolution du module d'élasticité avec le gradient d'altération, des développements de méthodes sont en cours avec un appareil de nanoindentation récemment acquis par le laboratoire. Ainsi, cette partie de la thèse a donné des résultats innovants et pertinents quant à la dégradation du gypse mais qui mériteraient d'être complétés par un plus grand nombre d'essais.

La dernière partie expérimentale a consisté en la détermination et l'évolution des constantes de dissolution du gypse aux conditions de température et de vitesse. Ces mesures sont faites pour des échantillons de gypse réduits en poudre et sur des disques inclus dans une résine. Les résultats ont mis en évidence une faible variabilité des constantes de dissolution en fonction du faciès de gypse pour un même jeu de conditions expérimentales. Cela est cohérent avec la composition de nos échantillons qui disposent de fortes teneurs en gypse et d'une absence de minéraux annexes pouvant participer activement à la dissolution par rapport au gypse. L'utilisation d'autres faciès de gypse plus hétérogènes ou de mélange artificiels (par exemple halite/gypse) permettrait d'étudier les effets d'autres minéraux sur la dissolution du gypse. Nos essais étant réalisés avec de l'eau pure, ils sont peu représentatifs d'un milieu réel mais présentent l'avantage de simplifier l'expérience pour obtenir les éléments nécessaires à l'élaboration du modèle numérique. Des essais ultérieurs pourront permettre d'affiner les constantes de dissolutions dans des conditions plus réalistes et affiner le modèle.

Les expériences de dissolution ont été réalisées pour 3 vitesses et 3 températures. Cela représente un nombre minime de conditions pour déterminer de manière précise l'allure d'une courbe (si sa tendance est linéaire, logarithmique ...). Mais la réalisation de ces essais pour l'ensemble des faciès et dans chaque condition représente un nombre d'essais conséquent qu'il était difficile d'accroître davantage dans les délais disponibles : un jeu de paramètres à tester représente un mois d'essais. Une évolution linéaire a été retenue comme première approche. Des essais ultérieurs permettront de la valider ou de modifier l'équation, notamment en ce qui concerne l'effet de la vitesse au niveau numérique. Ces essais sont également menés à des températures et des vitesses supérieures de ce qui peut être rencontré en conditions naturelles. Elles ne pouvaient néanmoins pas être abaissées davantage en raison du matériel utilisé (par exemple, le bain marie n'ayant pas de fonctionnalité de refroidissement, la température d'essai doit être supérieure ou égale à celle de la pièce). Toutefois, l'évolution des paramètres de dissolution avec les variations de conditions expérimentales indique que les mesures effectuées sont exploitables.

L'essai de dissolution sur plaque quant à lui est un développement entrepris tardivement et est encore en cours de développement, notamment pour l'application d'un débit plus faible et qui serait plus cohérent avec celui d'une fissure. La mise en place d'un système de récupération des éléments insolubles arrachés pourrait être pertinente.

### E. Conclusion du chapitre 3

Ce chapitre présente les principaux résultats de la campagne expérimentale effectuée dans ce travail de thèse. L'objectif principal est d'obtenir des paramètres pour initier des calculs après le développement d'un modèle HMC permettant de prendre en compte la dissolution du gypse et de prédire ces effets.

Trois axes de recherche ont été investigués. Le premier a conduit à la caractérisation microstructurale et minéralogique de manière fine de six faciès de gypse français dont 2 avec des teneurs en gypse inférieures à 90%. Ces essais visent à mieux appréhender la porosité des matériaux gypseux (peu décrite dans la littérature), sa résistance mécanique et ses caractéristiques très contrastées du point de vue pétrophysique. Le panel de matériaux testés présente des valeurs de porosité totale à l'eau ( $N_t$ ) de 0 à 10,5 % et des modules d'élasticité ( $E_{dyn}$ ) de 16,8 à 36,1 GPa. Ces valeurs illustrent bien la variabilité des propriétés pétrophysiques du gypse et amène à proposer une classification plus fines des faciès de gypse. Les propriétés mécaniques sont de manière logique et comme attendu, dépendantes de la quantité de vide au sein de la roche et ne dépendent pas de manière directe du faciès considéré. Le faciès albastroïde apparait compact et composé de plaque de gypse centimétrique avec une absence de porosité développée, tandis que le faciès fer de lance constitué également de macro cristaux imbriqués présente des vides importants. Les faciès matriciel et saccharoïde sont quant à eux les plus représentés en termes de volume en Ile de France.

Au-delà des différences de granulométrie, la porosité et sa structuration qui découle de la granulométrie sont affectés avec à volumes égaux ( $N_t = 10\%$ ), le développement d'une porosité bimodale et nanoporale ( $< 1 \mu\text{m}$ ) pour le gypse matriciel (porosité entièrement accessible), tandis que le gypse saccharoïde (*stricto sensu*) présente une porosité unimodale et davantage micro porale (diamètre moyen =  $20 \mu\text{m}$ ) qui n'est accessible aux molécules d'eau qu'au 2/3 en conditions ambiantes. Ces propriétés permettent des écoulements lents (perméabilité de l'ordre de  $1.10^{-9} \text{ m.s}^{-1}$ ) et des cinétiques d'imbibitions capillaires de l'ordre de quelques dizaines de  $\text{g.m}^2.\text{sec}^{-1}$ . Ces caractéristiques bien qu'avec de faible valeur permettent de générer des écoulements qui ont été étudiés dans la deuxième partie de ce programme expérimental.

Le Tableau 53 résume les principaux paramètres retenus à partir de la caractérisation des faciès gypseux pour le développement d'un système d'équation numérique visant la modélisation de l'impact hydromécanique du phénomène de dissolution du gypse. Afin de démontrer l'établissement d'un gradient d'altération dans le gypse, il a été développé un banc de percolation avec une charge constante de pression en entrée de fluide (0,3bar). L'évolution du gypse a été suivi pour 3 faciès matriciel, saccharoïde pur et saccharoïde à interlits pendant des périodes jusque 2 mois, avec des mesures intermédiaires à 1 semaine, 2 semaines et 1 mois. Ces essais ont permis de générer ces gradients d'altérations après un mois de percolation pour les faciès matriciel et saccharoïde pur au niveau des diamètres moyens d'entrée de pore en porosimétrie mercure. Le diamètre moyen s'élargit de  $0,8 \mu\text{m}$  à  $8 \mu\text{m}$  pour le gypse matriciel et de 10 à plus de  $100 \mu\text{m}$  pour le gypse saccharoïde ;

La porosité totale apparait peu impactée dans le gypse matriciel compte tenu de l'évolution limitée des diamètres de pores. De plus la dissolution rapide du gypse, limite la pénétration en profondeur du gradient au moins jusque 1 mois d'essai. Ces évolutions permettent cependant l'accroissement de la cinétique d'imbibition (notamment pour le gypse matriciel) tant qu'aucun chemin préférentiel n'apparait. Ces derniers rendent alors l'essai de percolation plus chaotique dans l'évolution des éprouvettes.

## CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

Le développement d'un gradient d'altération apparaît donc possible dans le gypse sur une épaisseur de quelques centimètres par des essais de percolation avec de l'eau pur. La mise en place de ce gradient dans les conditions naturelles apparaît néanmoins d'une probabilité plus faible. L'eau déjà chargé en éléments dissous et probablement des carbonates, la saturation du fluide sera déjà partiellement réalisé, ce qui limitera la dissolution en profondeur du massif de gypse. À titre de comparaison, (Zaier, 2021) dans sa thèse indique une dissolution 7 à 8 moins importante à partir d'un aquifère partiellement saturée dans la région de Sevrans (93). Ce rapport varie bien sûr avec la composition initiale du fluide.

Dans le cas des faciès saccharoïdes, l'essai à mis en évidence des gradients d'altération aboutissant à la mise en place de chemins préférentiels. Ce phénomène apparaît à partir d'un mois de percolation dans le faciès pur et dès la première semaine dans le faciès à interlits. Avant l'apparition de ces conduits, le gypse saccharoïde pur présente une augmentation de ces diamètres de pores de 10 à 20  $\mu\text{m}$ . Une fois initiée, ces chemins préférentiels canalisent l'essentiel du flux hydrauliques et freinent la dissolution dans la masse de gypse. L'altération devient alors majoritairement un élargissement des conduits. La mise en place précoce de ces digitations dans le faciès à interlits est liée à la présence de ces hétérogénéités de type argilo-ferrugineux où se localisent des pores de plus gros diamètres (150  $\mu\text{m}$ ).

Les observations de la surface des disques de gypse saccharoïde à interlits après la dissolution ont mis en évidence un phénomène en deux temps avec la dissolution. La première phase est la dissolution préférentielle de la phase gypseuse, ce qui laisse en place les hétérogénéités non solubles, notamment les argiles. Ces dernières quoique dispersives dans l'eau restent en place et un creusement préférentiel autour de ces zones riches en hétérogénéités apparaît (elles servent de points dur). Cependant, elles peuvent subir au fur et à mesure une dispersion, par un détachement de la surface au cours de l'essai de dissolution en fonction de la force hydraulique imposée (vitesse en rotation du fluide sur les disques ou écoulement gravitaire sur les pavés). Ce phénomène dispersif a été observé sur les pavés et les éprouvettes de percolation. De plus ces interlits riches en phases minérales secondaires forment une macroporosité (>15  $\mu\text{m}$ ) qui permet la formation rapide des conduits par dissolution notamment dans le gypse à interlits.

La cinétique de dissolution rapide du gypse entraîne un taux de dégradation de l'ordre de  $1.10^{-4} \text{ g.m}^2.\text{s}^{-1}$  (ce qui représente 0,3 grammes par jour à l'échelle des échantillons testés). La porosité totale des échantillons restent toutefois peu affecté compte tenu de la dissolution principalement de surface et ou à faible profondeur (quelques millimètres) par rapport aux éprouvettes centimétriques.

Au niveau mécanique, le module d'élasticité est impacté dès la première semaine de percolation avec des réductions de 10 à 20% du module élastique dynamique obtenu par la vitesse de propagation des ondes ( $V_p$ ). La dégradation apparaît dès 7 jours de percolation mais n'évolue plus dans la suite des essais. Une relation semble toutefois se dessiner avec la dégradation entre la variation de porosité et le module élastique. Mais le  $R^2$  de la relation n'étant pas optimum, cette relation devra être consolidée en réalisant un plus grand nombre d'essai. Aussi l'utilisation du suivi des modules d'élasticité dynamique réalisé au cours du travail expérimental n'a pas été utilisée pour l'élaboration du modèle numérique HMC. Il était initialement imaginé inscrire dans le code de calcul Disroc cette relation de l'évolution du module d'élasticité et donc de la mécanique à partir de la valeur de la porosité à chaque itération. Il a été choisi de garder cette approche mais en utilisant le paramètre de la cohésion et des valeurs de la littérature. Le développement de cette relation est détaillé avec l'ensemble du système d'équation proposé dans le chapitre suivant.

### CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

Enfin le troisième volet de ce chapitre a permis de décrire la cinétique de dissolution du gypse en fonction du faciès et des paramètres physico-chimiques imposés (vitesse d'agitation du fluide au contact du gypse agissant sur l'hydrodynamique, la température agissant sur les processus chimiques du point de vue thermodynamique et la granulométrie qui impacte la surface spécifique réactive des matériaux. Des essais de dissolution sur des échantillons de gypse broyés entre 0,2 et 0,5 mm ont été utilisés comme matériaux de référence. Concernant la surface spécifique des poudres testées, elle dépend en grande partie de la rugosité des faciès et donc du processus de cristallisation initial du faciès gypse mais également de la manière dont le gypse se casse ou délite lors du broyage. Des observations faites sur des surfaces de gypse après des essais de dissolution sur disque et pavé permettent d'observer cette rugosité sur des surfaces plus étendues (statistiques plus représentative). Le faciès albaströide apparaît ainsi comme le moins rugueux et donc celui avec la surface disponible la plus faible. Les essais sur disque et pavé permettent également d'investiguer l'initiation des chemins préférentiels notamment pour le gypse saccharöide à interlits. Les intercalations d'oxydes et d'argiles favorisent en effet une dissolution plus importante du gypse autour de ces minéraux qui se retrouvent ainsi mis en relief et soumis à un phénomène d'érosion.

Concernant les vitesses de dissolution, le taux de dissolution moyen ( $\tau_m$ ) varie peu en fonction des différents faciès pour un même jeu de conditions expérimentales, avec un taux de dissolution moyen de l'ordre de 1 à  $9 \cdot 10^{-2}$  mol.m<sup>2</sup>.sec<sup>-1</sup> à 300 tpm. La variation de la vitesse du fluide a également permis de mesurer le taux de dissolution à vitesse nulle soit ( $\tau_0$ ) qui correspond à un ordre de grandeur de  $6 \cdot 10^{-2}$  mol.m<sup>2</sup>.sec<sup>-1</sup> et l'effet de la vitesse sur le taux de dissolution dont le coefficient  $\tau_v$  vaut environ  $5 \cdot 10^{-2}$  mol.m<sup>2</sup>.sec<sup>-1</sup>.

La température favorise la vitesse de dissolution du gypse et sa solubilité et ce comme escompté d'après la littérature. La détermination des énergies d'activation ( $E_a$ ) permet de calculer le taux de dissolution pour une température donnée ce qui est un élément important à prendre en compte dans le modèle numérique HMC développé.

En conclusion, l'ensemble de ces expérimentations a permis de mettre en évidence la diversité des faciès gypseux au niveau des propriétés poromécaniques mais également de démontrer par des essais de percolation, qu'un écoulement est possible dans ce matériau souvent jugé comme non poreux et gouverné uniquement par une dissolution de surface. La mise en place d'un gradient de dissolution au sein d'une masse de gypse après 2 mois de percolation est validée par des mesures de percolations et de caractérisation post percolation.

L'ensemble des données collectées ont permis de définir les paramètres d'entrée pour l'élaboration d'un modèle numérique HMC à partir de la porosité totale ( $N_t$ ), de la perméabilité, de la masse volumique et du diamètre moyen des pores. Ces données sont complétées par le taux de dissolution moyen déterminé expérimentalement pour les 5 faciès de gypse étudiés et prenant en compte l'effet de la vitesse d'écoulement et de la température Tableau 53. La description de ce modèle et des résultats obtenus est présenté dans le chapitre qui suit.

### CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX

**Tableau 53 Synthèse des principales caractéristiques des différents faciès de gypse retenu pour la mise au point du modèle numérique. Les paramètres chimiques sont données pour une température de 25°C. \* Le module élastique est indiqué ici car intégré dans les paramètres du logiciel Disroc mais n'a pas été utilisé pour définir la relation entre l'aspect mécanique et la porosité**

	<b>Gypse matriciel</b>	<b>Gypse saccharoïde pur</b>	<b>Gypse saccharoïde à interlits</b>	<b>Gypse albaströïde</b>	<b>Gypse fer de lance</b>	<b>Gypse orogénique</b>
Porosité totale à l'eau (Nt) (%)	9,7 +/- 2,4	10,5 +/- 2,8	8,0 +/- 2,0	0,6 +/- 0,3	11,2 +/- 2,3	3,1 +/- 1,18
Réseau de pore	bimodal	unimodal	bimodal	//	bimodal	//
Perméabilité (m.sec <sup>-1</sup> )	5,4.10 <sup>-11</sup> +/-1	6,0.10 <sup>-10</sup> +/-1	1,6.10 <sup>-9</sup> +/-1			
Diamètre moyen des familles de pores (µm)	0.1 et 0.7	8.5	10 et 150	//	30 et 280	//
Masse volumique (kg/m <sup>3</sup> )	2333 +/- 27	2280 +/- 35	2322 +/- 32	2308 +/-22	2281 +/- 11	2320 +/- 2,8
* Module d'élasticité dynamique E <sub>dyn</sub> (GPa)	22,7 +/- 0,6	20,5 +/- 0,4	15,9 +/- 0,3	36,1 +/- 1,2	16,8 +/- 4,8	29,9 +/- 6
Ordre chimique de la réaction (n)	1,7 +/- 0,3	2,3 +/- 0,2	2,2 +/- 0,3	2,7 +/- 0,6	2,1 +/-0,5	
Taux de dissolution (τ <sub>0</sub> ) (mol :m <sup>2</sup> :sec)	0,09	0,07	0,02	0,001	0,021	
Effet de la vitesse du la dissolution	0,011 ln(v)	0,022 ln(v)	0,02 ln(v)	0,013 ln(v)	0,016 ln(v)	
Concentration de saturation (mol/L)	16,1 +/- 0,1	16,4 +/- 0,1	16,1 +/-0,0	16,5+/-0,4	16,0 +/- 0,1	
Énergie d'activation (Ea) (J/mol)	68,2	18,8	22,8	38,6	58,5	

## **Chapitre 4 Modélisation numérique**





## CHAPITRE 4 : MODELISATION NUMERIQUE

Le chapitre 4 décrit dans un premier temps les systèmes d'équations utilisées et développées dans le travail de modélisation et implémentées dans le logiciel Disroc. Les résultats des cas d'étude modélisés sont présentés dans un second temps.

Le code de calcul Disroc est commercialisé par la société Fracsima. Il s'agit d'un code de modélisation numérique basé sur la méthode des éléments finis (FEM). Ce code est développé pour modéliser des massifs rocheux à l'échelle macroscopique et les cas des structures géotechniques. Il permet la modélisation des phénomènes Thermo-Hydro-Mécanique (THM) couplés via un ensemble de modèles constitutifs déjà implantés dans le logiciel et des couplages supplémentaires que l'utilisateur peut introduire dans un module dédié. La possibilité d'activer un module chimique est intégrée dans ce code notamment pour la diffusion et le suivi de l'évolution de la concentration d'un unique élément chimique. Le module de chimie est néanmoins limité car n'introduit pas dans sa forme initiale d'interactions avec les paramètres HM. Dans le cas du gypse, il a été choisi de suivre la dissolution et l'altération de cette roche via la concentration en calcium ( $\text{Ca}^{2+}$ ).

Disroc est associé au logiciel GiD pour le pré-traitement (maillage, application des conditions aux limites...) et le post-traitement (la représentation graphique des massifs, les maillages, la visualisation des résultats...). Les calculs sont gérés par Disroc où chaque mode (mécanique, hydraulique ...) est considéré indépendamment et calculé suivant l'ordre ci-dessous (Figure 175). À chaque pas de temps, les grandeurs sont actualisées pour l'itération suivante.

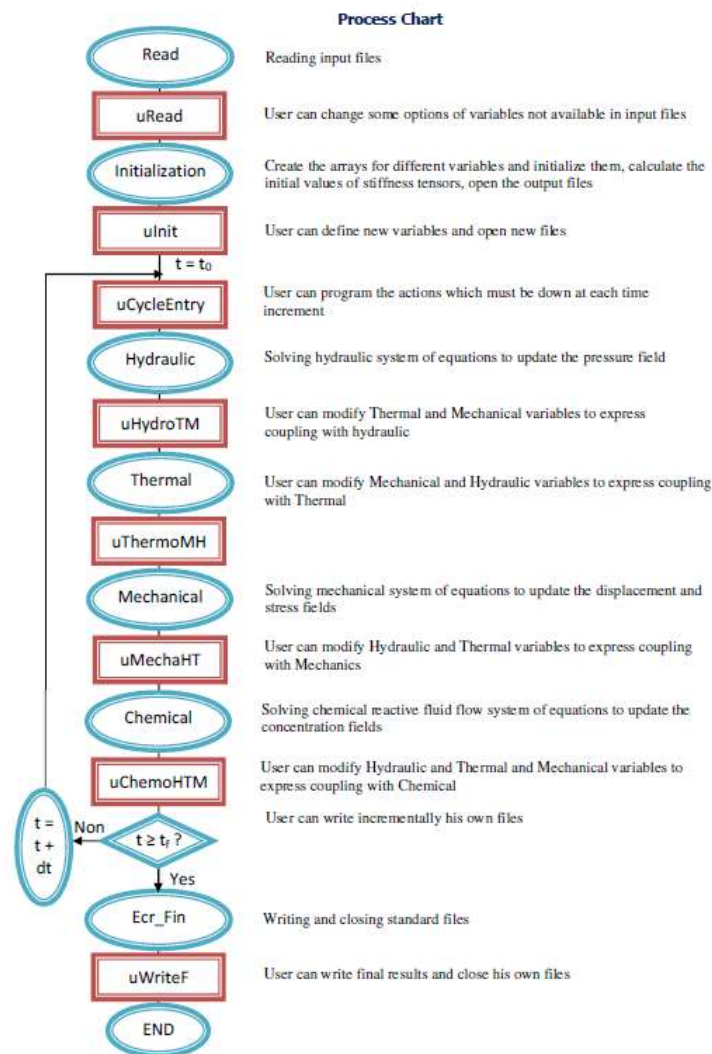


Figure 175 Schéma du process de calcul dans Disroc. source (Fracsima, 2016)

## A. Présentation du modèle HMC proposé

### I. Description des équations développées

#### 1) Dissolution dans Disroc

Le logiciel Disroc, qui est utilisé dans ce travail, dispose nativement d'un module de dissolution chimique. Le code considère le modèle créé comme un domaine  $\Omega$ . Ce domaine correspond au milieu (massif, ouvrage ...) qui est « dessiné » et dans lequel se déroule l'ensemble des interactions entre les éléments. La frontière  $\partial\Omega$  du domaine se décompose en des sous-parties pour chaque paramètre ( $\partial_h\Omega$ ,  $\partial_c\Omega$ ) où la valeur de la grandeur ou son gradient (vitesse, flux) sont imposées (Figure 176). La dissolution dans Disroc est abordée sous deux aspects, un aspect diffusif et un aspect de transport réactif dispersant les éléments dissous et renouvelant le fluide pour entretenir la réaction de dissolution, le tout dans l'ensemble  $\Omega$ .

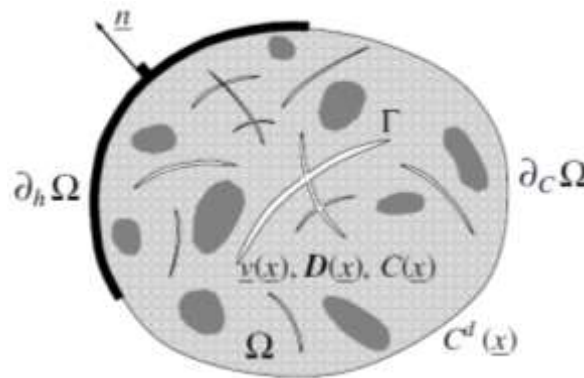


Figure 176 Schéma général du problème chimique initial dans Disroc. Source (Fracima, 2016)

#### 2) Dissolution par diffusion

Le principe de la diffusion repose sur la mise en équilibre par homogénéisation du milieu  $\Omega$ . Lors de cette homogénéisation, les éléments migrent en fonction des potentiels chimiques. Ces potentiels sont les gradients de concentrations mais peuvent être modifiés selon les conditions de pression et de température. La dissolution du gypse pour sa partie diffusif est contrôlée par la dissociation et la migration des éléments de calcium et de sulfates de la phase solide vers la phase liquide. La principale loi de détermination des coefficients de diffusion est la loi de Fick (eq 4.1). Elle se compose d'un coefficient de diffusion ( $D$ ) propre à chaque espèce chimique. Dans le cas du gypse, nous suivons le calcium dont le coefficient est  $2.10^{-9} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$  dans l'eau (Barton and Wilde, 1971; Colombiani, 2008; Zaier, 2021).

$$\tau_{diffusif} = -D \phi \nabla C \quad (\text{éq 4.1})$$

Avec  $\tau_{diffusif}$ , le flux de transport par diffusion,  $\Phi$  la porosité,  $\nabla C$  le gradient de concentration.

#### 3) Dissolution par transport réactif

Le second processus de dissolution considéré par Disroc est le taux de dissolution qui combine le transport par advection et la réaction chimique sur la surface d'un solide ( $\tau_r$ ), qui donne un terme source  $R_{ch}$  dans l'équation de transport-dissolution chimique. La dissolution se produit et un équilibre est atteint via une constante de dissolution et l'entraînement des éléments dissous par l'écoulement du fluide à proximité du solide. La partie diffusif est ici prise en compte car elle explique la saturation du milieu par simple migration des ions. Ce transport réactif est le transfert de masse et prend en compte les réactions géochimiques

(Thiéry, 2016). Ce phénomène entretient la réaction en maintenant le milieu en condition sous saturée. Il est défini par l'équation :

$$\frac{\partial (\phi C)}{\partial t} + \text{div} (C \underline{v} - D \phi \nabla C) = R_{ch} \quad (\text{éq 4.2})$$

Avec  $C$ , la concentration en solution,  $t$  le temps et  $\underline{v}$  la vitesse d'écoulement, et au second membre  $\tau_i$  la source chimique qui résulte de la dissolution de surface et dont l'expression sera donnée plus loin.  $D$  le coefficient de diffusion dont les valeurs dépendent de la tortuosité du milieu et des propriétés de dispersion du soluté. Noter que la vitesse  $\underline{v}$  dans ces équations est une donnée issue du calcul hydraulique.

À partir de ce modèle d'écoulement et de dissolution de surface, il peut être construit un modèle de dissolution dans le milieu poreux en trouvant des quantités équivalentes à  $\tau_i$  et à  $\underline{v}$ . La première étant un taux de dissolution par unité de surface, elle est remplacée par la surface spécifique des pores exposée à la dissolution. La deuxième est remplacée par la vitesse interstitielle moyenne d'écoulement de fluide dans le milieu poreux, noté  $V_p$ , qui est relié à la vitesse d'écoulement de Darcy,  $V_D$ , et à la porosité par :

$$V_D = V_p \Phi \quad (\text{éq 4.4})$$

La vitesse d'écoulement hydraulique  $V_D$  est simplement notée  $\underline{v}$  par la suite. Elle s'obtient par la loi de Darcy en fonction de la perméabilité (eq 4.3) :

$$\underline{v} = -k \nabla p \quad (\text{éq 4.3})$$

Avec le coefficient de mobilité hydraulique  $k$  donné par :

$$k = \frac{k_{in}}{\eta} = \frac{k_{Darcy}}{\rho_f g}$$

où  $k_{in}$  est la perméabilité intrinsèque du milieu poreux,  $\eta$  la viscosité dynamique du fluide,  $k_{Darcy}$  la perméabilité au sens de Darcy,  $\rho_f$  la masse volumique du fluide,  $g$  la gravité et  $\nabla p$ , gradient de pression dans le fluide.

## II. Détermination des paramètres de dissolution

Le développement du modèle numérique est fait à partir de l'équation générique 4.2. Il nécessite de définir des conditions préalables pour prendre en compte l'évolution de la porosité et des propriétés mécaniques dans le cadre d'une dissolution active dans le gypse, en notant  $n_{pore}$ , le nombre de pore par unité de volume et qui est constant dans le temps. Ces conditions prennent la forme des hypothèses suivantes.

- la porosité est divisée en un nombre de pores connu ( $n_{pore}$ );
- le diamètre initial des pores ( $R_m$ ) est identique puis évolue ;
- la géométrie de ces pores est sphérique ;
- il est considéré un seul régime de dissolution.

Dans les parties précédentes, le régime de dissolution du gypse est présenté comme suivant la théorie de la double couche. Cette théorie induit un régime de dissolution mixte (transport-diffusion) dont chaque paramètre contrôle tour à tour la dissociation du gypse et sa dissémination. Ce changement de régime intervient à proximité de la saturation (vers 90% de  $C_{sat}$ ) (Figure 177). Dans la suite de ce travail l'hypothèse d'un unique régime de dissolution tel que défini par Guo et al., (2016) est émise. D'après leurs travaux, l'utilisation d'un seul régime permet de simplifier le calcul sans modifier les résultats de manière significative (Figure 160, chapitre3.C).

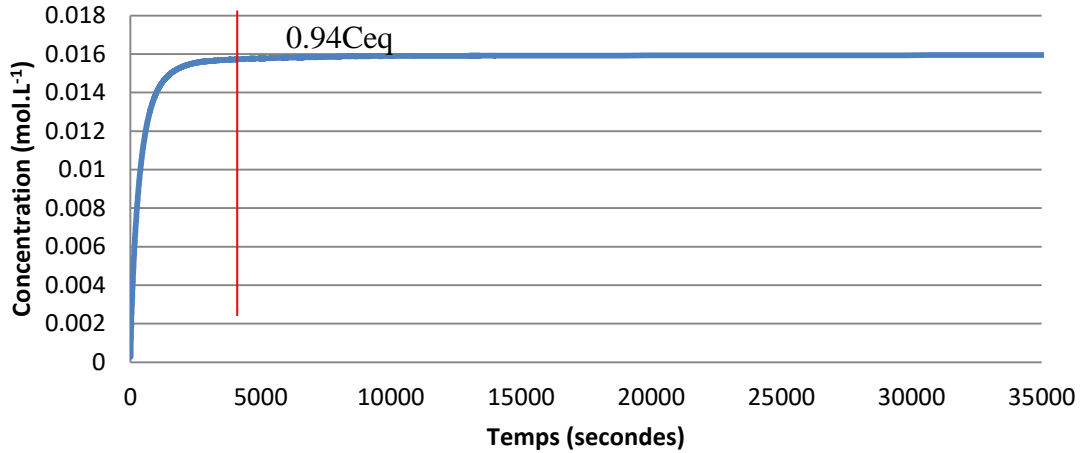


Figure 177 : Évolution de la concentration avec la dissolution du gypse au cours du temps. Cas d'un gypse matriciel

### 1) Détermination du nombre de pore et de la surface réactionnelle ( $S_{co}$ )

À partir des postulats faits sur un nombre connu de pores et leurs géométries sphériques, il est calculé un nombre de pores ( $n_{pore}$ ) à partir de la porosité initiale ( $\Phi_0$ ) pour un rayon ( $R_m$ ). Ce rayon est celui déterminé expérimentalement dans le chapitre précédent. Le nombre de pores correspond ainsi au nombre de sphères de volume ( $V_{pore}$ ) et de rayon,  $R_m$  dont la somme des volumes est égale à la porosité ( $\Phi_0$ ). À partir de l'équation du volume d'une sphère ( $V_{sphère}$ ) (4.5), le nombre de pores est déterminé par l'équation 4.6.

$$V_{sphère} = \frac{4\pi r^3}{3} \quad (\text{éq 4.5})$$

$$n_{pore} = \frac{\Phi}{V_{pore}} \quad (\text{éq 4.6})$$

Soit :

$$n_{pore} = \frac{\Phi_0}{\frac{4}{3}\pi R_m^3} \quad (\text{éq 4.7})$$

Le volume de vide peut ainsi se calculer suivant l'équation 4.8 :

$$\Phi = n_{pore} \frac{4}{3}\pi R_m^3 \quad (\text{éq 4.8})$$

En considérant une géométrie sphérique, il est également possible de déterminer la surface offerte aux échanges chimiques entre le fluide et le solide, qui est la surface des parois des pores, notée  $S_{co}$ . Elle s'obtient à partir de l'équation à partir de l'équation 4.10, qui définit la surface d'une sphère de rayon connu ( $R_m$ ). Cette surface définit

$$S_{sphère} = 4\pi r^2 \quad (\text{éq 4.9})$$

$$S_{co} = n_{pore} * 4\pi R_m^2 = \frac{3\Phi}{R_m} \quad (\text{éq 4.10})$$

### 2) Évolution de la dissolution avec la vitesse d'écoulement de surface

Le taux de dissolution par advection ( $\tau_t$ ) correspond au transport des éléments dissous dans le milieu par l'écoulement du fluide réactionnel à la surface du solide, de l'amont vers l'aval. Les lois décrivant cette vitesse d'écoulement comme celles de Darcy ne prennent pas initialement en compte la dissolution et la variation de la porosité ( $\Phi$ ) en fonction du taux de

## CHAPITRE 4 : MODELISATION NUMERIQUE

dissolution  $\tau_t$ . Ce taux de dissolution traduit la quantité de moles prélevées par unité de surface et de temps ( $\text{mol.m}^{-2}.\text{sec}^{-1}$ ). Elle est une fonction de la vitesse d'écoulement et de la concentration du fluide. Pour les raisons vues ci-dessous, nous considérons une fonction affine de la vitesse :

$$\tau_t = H(\tau_0 + \tau_p v) \quad (\text{éq 4.11})$$

Où  $v$  est la vitesse de fluide,  $\tau_0$  et  $\tau_p$  sont deux paramètres constants et  $H$  est un paramètre qui dépend du degré de saturation du fluide en éléments à dissoudre. Cette dépendance est exprimée par :

$$H = K_H \left(1 - \frac{c}{c_{eq}}\right)^n \quad (\text{éq 4.12})$$

Où  $c$  est la concentration du fluide,  $c_{eq}$  est la concentration d'équilibre ou de saturation et  $K_H$  et  $n$  sont deux paramètres caractéristiques qui sont déterminés expérimentalement. Soit :

$$\tau_t = K_H \left(1 - \frac{c}{c_{eq}}\right)^n (\tau_0 + \tau_p v) \quad (\text{éq 4.13})$$

Le taux de dissolution  $\tau_t$  joue le rôle du terme source dans l'équation générale 4.2 de transport-dissolution qui est implantée dans Disroc. Le terme  $R_{ch}$  correspond à un terme source chimique traduisant la dissolution et déterminant ensuite l'évolution de la surface des pores en fonction du taux de dissolution et de la porosité. Le terme  $R_{ch}$  correspond ainsi à une équation du type :

$$R_{ch} = \tau_t * n_{pore} * S_{sphère} \quad (\text{éq 4.14})$$

L'évolution de la porosité se faisant à partir d'une géométrie sphérique,  $R_{ch}$  peut être défini comme suit :

$$R_{ch} = \frac{3\Phi}{R_m} \tau_t \quad (\text{éq 4.15})$$

Ainsi, l'équation 4.2 peut s'écrire :

$$\frac{\partial(\Phi C)}{\partial t} + \text{div}(Cv^D + D\Phi\nabla C) = \frac{3\Phi}{R_m} K_H \left(1 - \frac{c}{c_{eq}}\right)^n (\tau_0 + \tau_p v) \quad (\text{éq 4.16})$$

Pour rendre cette équation traitable par la méthode numérique, nous allons écrire  $R_{ch}$  qui exprime une cinétique non linéaire avec la puissance  $n$ , sous une forme linéarisée :

$$R_{ch} = \frac{3\Phi}{R_m} K_H \left(1 - \frac{c}{c_{eq}}\right)^{n-1} \left(\frac{\tau_0 + \tau_1 v}{c_{eq}}\right) (C_{eq} - C) \quad (\text{éq 4.17})$$

ou encore :

$$R_{ch} = -\alpha(C - C_{eq}) = -\alpha C + \beta \quad (\text{éq 4.18})$$

Avec :

$$\alpha = \frac{3\Phi}{R_m} K_H \left(1 - \frac{c}{c_{eq}}\right)^{n-1} \left(\frac{\tau_0 + \tau_1 v}{c_{eq}}\right) \quad (\text{éq 4.19})$$

$$\beta = \alpha C_{eq} \quad (\text{éq 4.20})$$

Ceci permet d'écrire l'équation 4.15 sous la forme :

$$\Phi \frac{\partial C}{\partial t} + \frac{\partial \Phi}{\partial t} C + \text{div}(Cv - D\Phi\nabla C) - \alpha C + \beta = 0 \quad (\text{éq 4.21})$$

L'équation générique qui est résolue dans le code Disroc, s'écrit sous la forme :

$$C_c \frac{\partial C^N}{\partial t} + \text{div}(C^N v^D - D^N \Phi \nabla C^N) + A_c C^N - S_c = 0 \quad (\text{éq 4.22})$$

Les coefficients de cette équation doivent être donnés à tout instant par l'utilisateur. En comparant cette équation à l'équation 4.24 et en prenant la concentration numérique  $C^N=C$ , la concentration de la solution et  $v^D$  la vitesse de l'écoulement  $v$  qui est donnée par le module hydraulique, on peut établir les expressions suivantes pour les autres coefficients de l'équation :

$$C_c = \Phi \quad , \quad D^N = D\Phi$$

$$A_c = \frac{\partial \Phi}{\partial t} + \alpha \quad (\text{éq 4.23})$$

$$S_c = \beta = \left( A_c - \frac{\partial \Phi}{\partial t} \right) C_{eq} \quad (\text{éq 4.24})$$

Ce sont ces paramètres qui sont déterminés à tout instant dans Disroc afin de simuler le phénomène de transport réactif et son évolution avec l'avancement de la réaction de dissolution.

### 3) Évolution de la porosité

La principale interaction d'un module chimique sur les paramètres THM est son effet sur l'évolution de la porosité et donc les paramètres hydrauliques avec la dissolution (Karrech et al., 2018, 2011a; Ha, 2012). Pour quantifier numériquement la quantité de matière dissoute et le volume correspondant, il est nécessaire de connaître le volume de fluide qui détermine la masse totale pouvant être dissoute à un instant  $t$ . Ce même volume est croissant dans le temps avec la dissolution. Le volume de fluide ( $V_{\text{fluide}}$ ) est déterminé à partir de la porosité ( $\Phi$ ) et du volume total ( $V^{\text{tot}}$ ) selon l'équation 4.25.

$$V_{\text{fluide}} = \Phi * V^{\text{tot}} \quad (\text{éq 4.25})$$

La quantité de matière dissoute établie à partir du taux de dissolution ( $\tau_p$ ) à chaque instant entraine la production d'un volume de vide supplémentaire. Cette porosité nouvelle est dépendante du volume molaire de la roche étudiée (ici du gypse) et de sa masse volumique. Ce volume molaire ( $P^{\text{mol}}$ ) est une constante déterminée selon l'équation :

$$\frac{P^m}{M_v^g} = P^{\text{mol}} \quad (\text{éq 4.26})$$

Avec  $M_v^g$ , la masse volumique du gypse ( $2\,300 \text{ kg.m}^{-3}$ ) et  $P^m$ , la masse molaire du gypse ( $0.172 \text{ kg.mole}^{-1}$ ). Ainsi  $P^{\text{mol}}$  vaut  $7.47.10^{-5} \text{ mole.m}^{-3}$ .

Le volume dissout est calculé en fonction de la masse dissoute ( $\Delta M_{\text{gyp}}^{\text{dissous}}$ ), suivant :

$$\frac{\Delta M_{\text{gyp}}^{\text{dissous}}}{\Delta t} = \frac{3\Phi}{R_m} \tau_t P^{\text{mol}} \quad (\text{éq 4.27})$$

Cette constante  $P^{\text{mol}}$  associé au taux de dissolution permet de calculer l'augmentation de la porosité (dont la géométrie est considérée sphérique) à partir de cette masse et de ce volume molaire suivant la relation :

$$\frac{\Delta \Phi}{\Delta t} = \tau_p \frac{3\Phi}{R_m} \frac{M_v^g}{P^m} \quad (\text{éq 4.28})$$

L'évolution du rayon moyen de pore ( $R_m$ ) peut ainsi être déterminée en fonction de l'évolution du volume de la sphère suivant la réaction suivante (éq 4.29) :

$$\Delta R_m = \frac{3\Delta\Phi}{4\pi n_{pore}}^{1/3} \quad (\text{éq 4.29})$$

À partir de  $R_m$ , la surface de réaction est mise à jour à chaque instant selon l'équation 4.29.

#### 4) Évolution de la perméabilité

La perméabilité est généralement exprimée via la loi de Darcy, équation 4.30 :

$$v_x = -\frac{k^{in}}{\eta} \frac{\Delta P}{\Delta x} \quad (\text{éq 4.30})$$

Où la perméabilité intrinsèque  $k^{in}$  est un paramètre propre à la structure du milieu poreux et  $\eta$  est le coefficient de viscosité dynamique du fluide interstitiel.

Il faut également prendre en compte l'évolution de la vitesse d'écoulement ( $v$ ) avec la dissolution. Cette dernière étant directement reliée à la perméabilité, elle-même dépendante de la porosité et s'accroissant avec la dissolution (éq 4.28).

La perméabilité est donc évolutive en fonction de l'avancement de la dissolution et de l'augmentation de la porosité. Afin de prendre en compte l'évolution de la perméabilité, l'équation de Kozeny-Carman (Kozeny, 1927; Chapuis and Aubertin, 2003) est utilisée, équation dérivée de la loi de Poiseuille décrivant l'évolution de la perméabilité (éq 4.31).

$$K = k_0 \left(\frac{\Phi}{\Phi_0}\right)^3 \left(\frac{1-\Phi_0}{1-\Phi}\right)^2 \quad (\text{éq 4.31})$$

#### 5) Effet de la dissolution sur les propriétés mécaniques

Dans le chapitre sur les résultats expérimentaux, le suivi du module élastique via des méthodes non destructives et simples de mise en œuvre est privilégié. Le suivi de ce paramètre s'est avéré complexe à cause d'une forte variabilité des résultats entre les échantillons (notamment avec l'apparition des chemins préférentiels) et donc l'interprétation des résultats difficile. Pour la mise au point du modèle numérique, un changement du paramètre mécanique associé à la dissolution est privilégié. Il est ainsi retenu la cohésion ( $C^h$ ) comme paramètre d'endommagement des propriétés mécaniques, plutôt que le module d'élasticité ( $E$ ). Ce paramètre bien que moins impactant dans la stabilité des massifs que le module d'élasticité ou l'angle de frottement, est utilisé en première approche pour le développement du modèle.

Le modèle mécanique utilisé est un modèle de Mohr-Coulomb élasto-plastique défini par six paramètres qui sont  $E$ ,  $\nu$ ,  $C^h$ ,  $\varphi$ , l'angle de dilatance  $\psi$  qui est pris égal à l'angle de frottement  $\varphi$  et la résistance en traction ( $\sigma_t$ ) qui n'est pas prise en compte dans cette étude. Chaque paramètre est désigné par deux valeurs, une initiale (matériau intact) et une final (matériau ayant subi la dissolution maximum). Chaque paramètre est régi par une équation générique (éq 4.32) où un facteur  $z$ , variant entre 0 et 1, détermine le degré d'avancement du phénomène d'endommagement du paramètre considéré. Un facteur  $z$  par paramètre considéré peut être défini, par exemple :

$$C^h = (1 - z_c)C_i + z_c C_f \quad (\text{éq 4.32})$$



## CHAPITRE 4 : MODELISATION NUMERIQUE

Où  $C^h$  est la cohésion à un instant,  $C_i$  la valeur initiale de la cohésion (MPa),  $C_f$  la valeur finale de la cohésion et  $z_c$  le coefficient d'évolution de la cohésion.

Afin de ne pas alourdir les calculs, seule une évolution de la cohésion à partir de valeurs sélectionnées à partir de la thèse de Auvray, (2003) est considérée. Les valeurs limites sont fixées à  $C_i=4$  MPa et  $C_f= 0,2$  MPa. Le coefficient  $z_c$  est quant à lui défini en fonction de l'évolution de la porosité par l'équation suivante :

$$z = \frac{\Phi - \Phi_0}{\Phi_{max} - \Phi_0} = \frac{\Phi - \Phi_0}{0.8} \quad (\text{éq 4.33})$$

La porosité maximale est fixée à 0,9 et la porosité initiale du gypse est fixée à 0,1.

**Synthèse :** il vient d'être présenté les équations régissant le modèle HMC implémenté dans le logiciel Disroc à partir des travaux expérimentaux réalisés dans cette thèse. La dissolution chimique dans Disroc est présente dans la version de base bien que la saisie de ces paramètres est ne fait pas partie de l'interface du logiciel et doit être définie directement dans le code. Les équations de base permettent de prendre en compte la dissolution selon les deux aspects que sont la dissolution par diffusion et par advection.

Afin de développer un modèle de dissolution affectant les paramètres HM, l'hypothèse d'une porosité ( $\Phi_0$ ) de forme sphérique est faite. Cette porosité se divise en un nombre constant de pores ( $n_{pore}$ ) de volume calculé à partir du rayon de pore ( $R_m$ ) définit expérimentalement.

Le taux de dissolution  $\tau$ , et son évolution sont définis à partir de l'équation générale (éq 4.13). L'évolution du taux de dissolution est déterminée par deux paramètres ( $A_c$  et  $S_c$ ) calculée à chaque instant d'après les équations 4.23 et 4.24. Cette dissolution augmente la porosité suivant l'équation 4.28 et se répercute sur les autres paramètres hydrauliques et mécaniques. La surface et le volume réactionnel sont ensuite recalculés à chaque instant par l'évolution du rayon de pore  $R_m$  augmentant avec la porosité (éq 4.29).

L'évolution au niveau hydraulique se fait via la relation de Kozeny-Carman (éq 4.31) et dans l'aspect mécanique suivant une loi élasto-plastique de type Mohr-Coulomb. Cette loi est défini par l'évolution de la cohésion ( $c$ ) en lien avec la porosité, suivant l'équation 4.33.

Le modèle nécessite ainsi 12 paramètres dont 7 expérimentaux. À titre d'exemple, le Tableau 54 regroupe l'ensemble des valeurs initiales à introduire dans le logiciel pour la modélisation d'un cas de dissolution pour un gypse saccharoïde pur, les valeurs de dissolution sont données pour une température de 25°C.

**Tableau 54 paramètres initiaux nécessaire pour la modélisation HMC du gypse saccharoïde pur.**

Paramètres	$\Phi_0$ (%)	$Dif_0$ (m <sup>2</sup> /s)	$R_m$ (m)	$\tau_0$ (mol/m <sup>2</sup> /sec)	$\tau_p$ (mol/m <sup>2</sup> /sec)	E Module d'élasticité (GPa)	cohésion initiale ( $C_0$ ) MPa
Valeurs	0.1	$2 \cdot 10^{-9}$	$1.00 \cdot 10^{-5}$	$2.3 \cdot 10^{-2}$	$9.20 \cdot 10^{-05}$	22	4
Paramètres	$p^{mol}$ (mol/m <sup>3</sup> )	$C_{eq}$ (mol/L)	Ordre chimique de la réaction (n)	Perméabilité (m <sup>2</sup> )	Cohésion finale ( $C_f$ )(MPa)	$\nu$ Coefficient de Poisson	
Valeurs	$7.47 \cdot 10^{-5}$	1.55E-02	2.3	$3 \cdot 10^{-16}$	0.2	0.28	

## B. Résultats de la modélisation numérique

Cette deuxième partie de chapitre vise à présenter deux cas de simulations numériques développés à partir de l'ensemble des équations présentées précédemment. Le premier cas modélisé est une éprouvette de gypse saccharoïde pur, pour confronter les équations proposées aux résultats de l'expérience lors de l'essai de percolation. Ce résultat est cohérent quant à la définition du taux de régression et de l'évolution des diamètres de pores. Toutefois, il présente une dissolution uniforme de la masse de gypse et ne développe pas de chemins préférentiels.

Le second modèle étudié est à l'échelle du massif avec une strate de gypse en bord de versant et accolée à un banc de calcaire. Cette géométrie n'illustre pas un cas précis mais pourrait correspondre à la situation de l'Ile de France. Ce cas de modélisation vise un premier objectif de transposer les résultats de l'échelle de l'éprouvette à un massif et d'en conclure la pertinence ou les adaptations à envisager pour faire fonctionner le modèle à cette échelle. Le second objectif recherché est l'étude de la réponse d'une structure géotechnique (ici un bâtiment) à l'affaissement du terrain par la dissolution du gypse. La mise en place d'une strate de gypse dans un versant tente également de vérifier le développement d'un glissement de terrain au sein d'une couche de gypse comme le laisse supposer la littérature. Cet objectif est principalement exploratoire et constitue une voie de perspective pour la poursuite de ce travail.

### I. Simulation d'un éprouvette sous percolation

#### 1) *Présentation du modèle*

Le premier cas numérique développé dans ce travail de thèse, est celui visant à reproduire les résultats obtenus expérimentalement lors de l'essai de percolation. Il est ainsi modélisé une éprouvette de 50 mm de diamètre pour un élanement de 2 (Figure 178). Le maillage est composé de 1071 nœuds et 2000 mailles triangles. Une hauteur de maille représente une hauteur inférieure à 2 mm. Les paramètres d'entrée comme la poussée hydraulique de l'eau de percolation (0,3 bars de pression) et la concentration utilisée sont similaires à l'expérience.

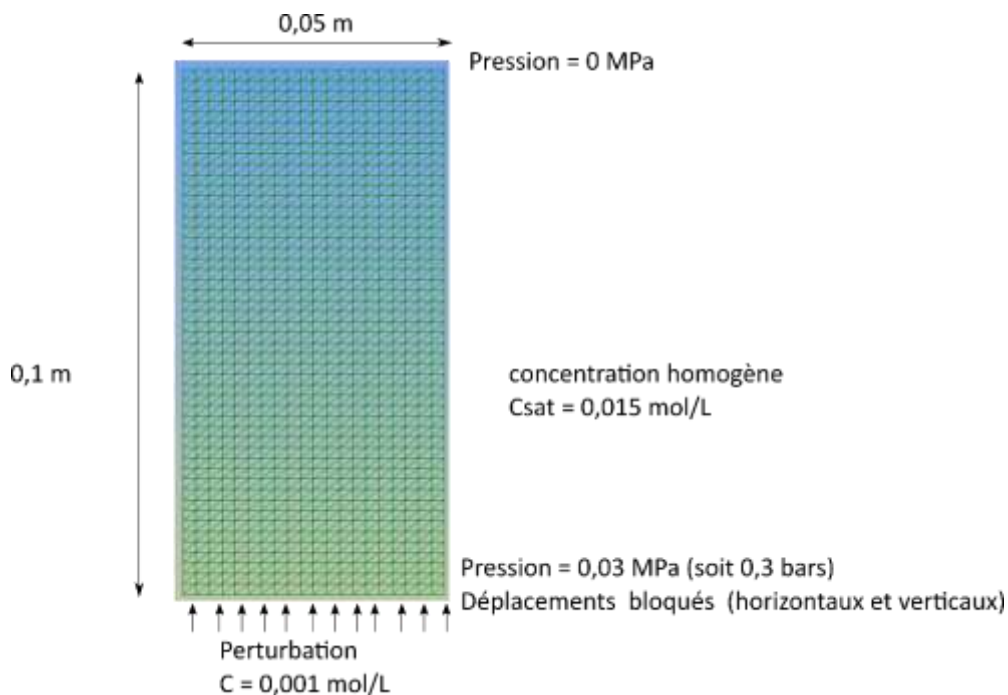


Figure 178 Schéma du modèle d'éprouvette des conditions initiales.

2) Résultats

a) **Éprouvette avec une porosité uniforme**

Le calcul est réalisé pour une durée de 60 jours (soit la période de 2 mois expérimentale). Afin de faciliter le calcul, les paramètres du modèle dépendants des résultats expérimentaux (qui avaient été exprimées en secondes dans le chapitre 3) sont convertis en jours. Les valeurs retenues en entrée sont celles d'un gypse saccharoïde pur et sont présentées dans le Tableau 54.

Tableau 55 conversion des paramètres dépendants du temps de la seconde à une période journalière

Paramètre	Valeurs du paramètre en seconde	Valeurs du paramètre en jours
Coefficient de diffusion ( $m^2 \cdot sec^{-1}$ )	$1.0 \cdot e^{-09}$	$8.6 \cdot e^{-05}$
Taux de dissolution pour une vitesse nulle ( $mol \cdot m^{-2} \cdot sec^{-1}$ )	$1.7 \cdot e^{-02}$	1469
Effet de la vitesse sur le taux de dissolution ( $mol \cdot m^{-2} \cdot sec^{-1}$ )	$6.0 \cdot e^{-02}$	5184
Perméabilité ( $m^2$ )		$3 \cdot e^{-16}$
Porosité (%)		0.1
Diamètre de pore (m)		$1 \cdot 10^{-5}$
Volume molaire ( $m^3/mol$ )		$7.5 \cdot e^{-5}$
Concentration de saturation ( $mol \cdot L^{-1}$ )		$15 \cdot e^{-2}$
Module d'élasticité (GPa)		20
Coefficient de Poisson		0.28
Cohésion initiale (MPa)		4.0
Cohésion limite (MPa)		0.2

Le résultat de la simulation montre une diminution de la concentration dans la zone dissoute avec la propagation du front de dissolution avec le fluide sous saturée. Dans le cas présenté, la porosité initiale ( $\Phi=0,1$ ) est uniforme et homogène sur l'ensemble de l'éprouvette numérique. Cette uniformité dans la distribution des paramètres favorise la propagation de la perturbation de manière uniforme et prend l'aspect d'une dissolution de surface (par rangée de mailles) (Figure 179). Il est considéré une maille entièrement dissoute lorsque sa porosité atteint 90 % ( $\Phi=0,9$ ). La dissolution ne commence à affecter la porosité qu'après une quinzaine de jours de simulation.

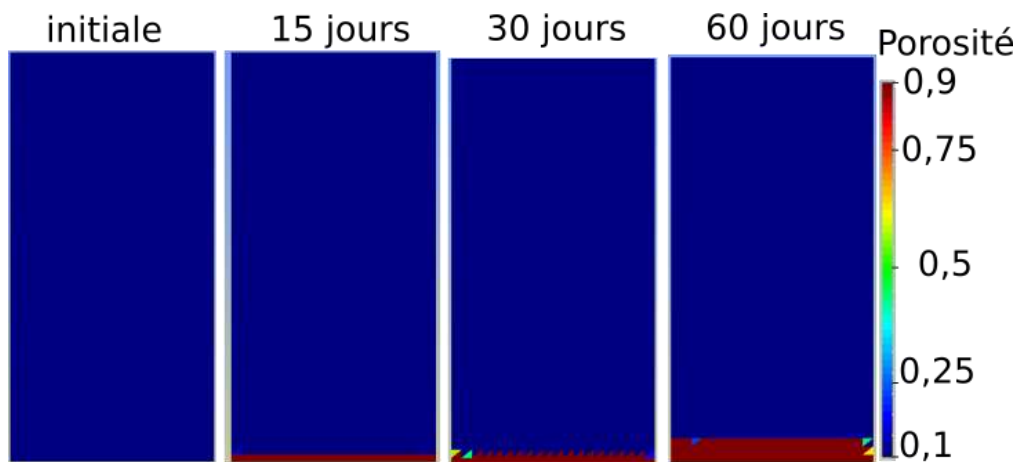


Figure 179 Évolution de la porosité avec la dissolution par ligne de maille

Ainsi la dissolution dans le modèle réalisé affecte une épaisseur de 8 mm de gypse (Figure 180), dont environ 4 mm sont complètement dissous (porosité > 0,9). Ce taux de récession

apparaît cohérent par rapport à nos résultats expérimentaux de 1 à 2,5 mm pour la même durée d'expérimentation selon l'éprouvette considérée (chapitre 3, partie B). Nos résultats comportent l'apparition de chemin préférentiel qui ont canalisés le fluide sous saturée et freiné la dissolution dans une partie des échantillons à partir de 1 mois de mesure.

À 1 mois de simulation, la récession de l'éprouvette numérique est de 1 à 2 mm ce qui est concordant avec l'hypothèse du chapitre précédent selon laquelle le chemin préférentiel inhiberait en partie la dissolution de surface. Le gradient de dissolution, qui représente l'épaisseur de gypse en cours d'altération mais non entièrement dissous est ainsi d'environ 4 mm. Ce front de dissolution apparaît comme peu épais du fait de la relation entre vitesse d'écoulement et diffusion. La diffusion est un paramètre beaucoup plus lent ( $8.6.e^{-05} \text{ m}^2.\text{jours}^{-1}$ ) que la vitesse. La porosité évolue donc selon un front linéaire, avec un gradient de dissolution millimétrique qui est également uniforme. Cette absence d'évolution hétérogène, comme observé expérimentalement, provient de l'uniformité parfaite du modèle numérique et de l'absence d'hétérogénéité dans les différents paramètres du modèle (diamètres des pores, des variations locales de porosité...).

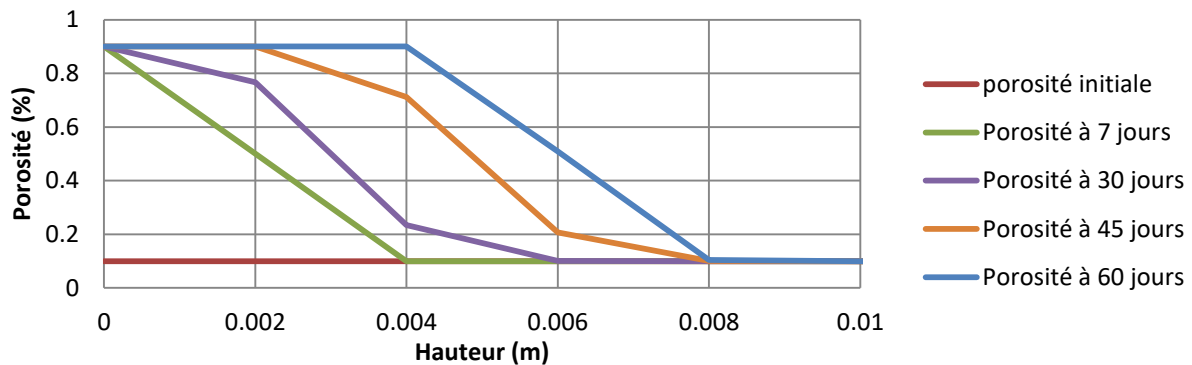


Figure 180 Évolution de la porosité dans la simulation d'une éprouvette de gypse saccharoïde pur avec une distribution homogène de la porosité sur le premier centimètre modélisé.

Dans la première partie de ce chapitre, il est présenté les équations utilisées pour développer notre modèle où l'ensemble des paramètres sont interdépendants vis-à-vis de la porosité (évolution de la taille de pore, de la mécanique...). L'évolution uniforme de la porosité conduit donc à une évolution similaire des autres paramètres avec une évolution par rangée de mailles (Figure 181). Un effet de bord et purement numérique est observé mais n'affecte pas les résultats.

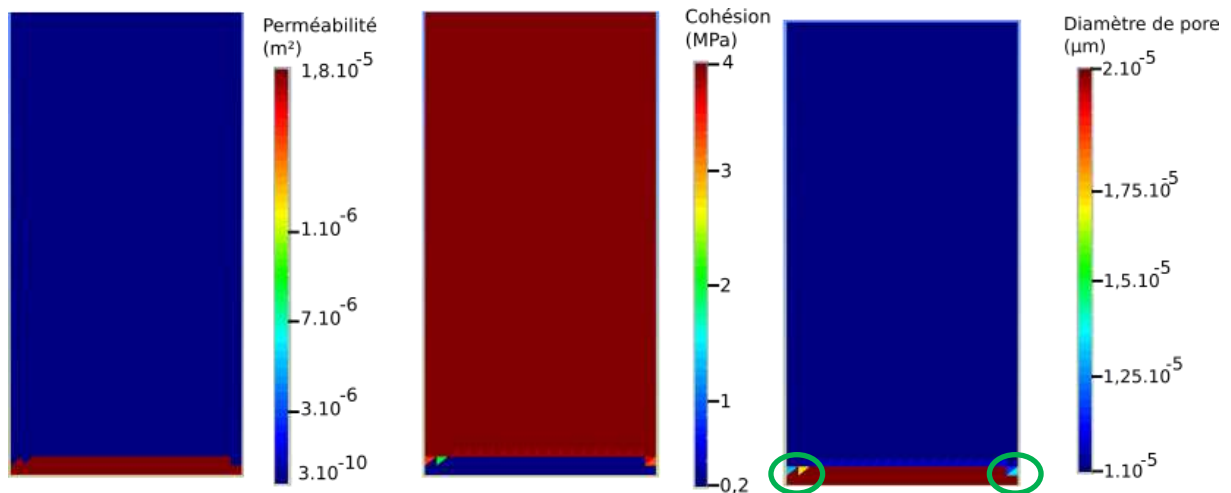


Figure 181 Évolution après 60 jours de modélisation

La perméabilité évolue dans le maillage suivant la même surface que la porosité. Sa valeur passe ainsi de  $3.10^{-10} \text{ m}^2$  à  $1,8.10^{-5} \text{ m}^2$ . Le diamètre de pore s'accroît également par un doublement avec un diamètre maximal de  $20 \mu\text{m}$  (Figure 182). Ce résultat apparaît cohérent avec les résultats de porosimétrie mercure décrit dans la partie B du chapitre 3. Il y est observé un agrandissement de même ordre de grandeur du diamètre de pore après 2 semaines de percolation sur le premier centimètre. Il est à noter un effet de bord purement numérique sur les mailles à l'interface perturbation-gypse sain (cercle vert sur la Figure 181).

Dans la suite de l'expérimentation, ce diamètre de  $20 \mu\text{m}$  apparaît dans les sections plus profondes en même temps que les chemins préférentiels. Nous avons alors formulées l'hypothèse qu'à partir de ce diamètre de  $20 \mu\text{m}$ , l'évolution vers une porosité maximale est rapide.

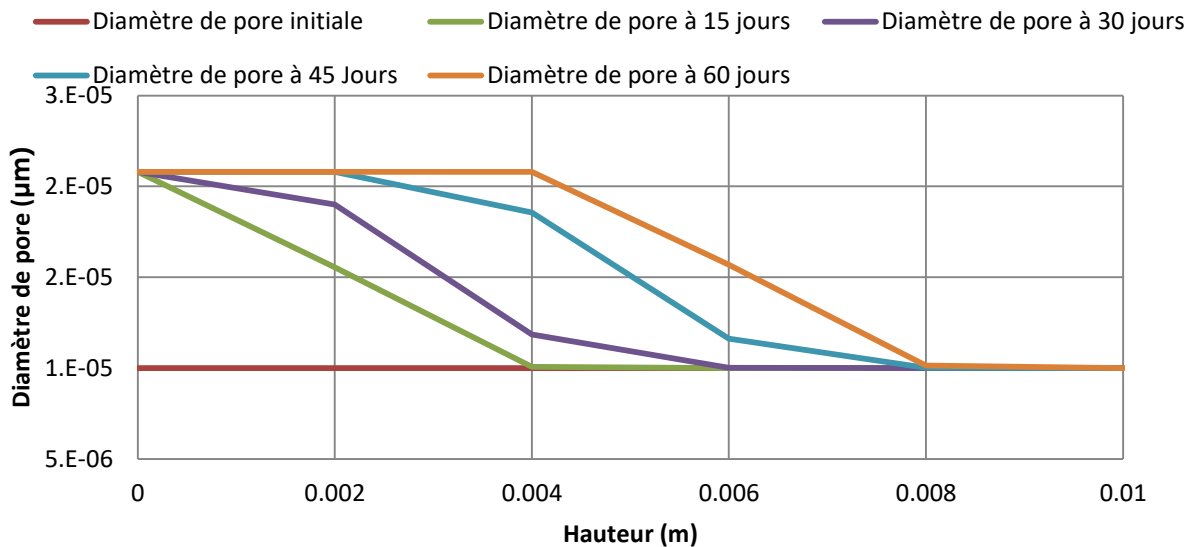


Figure 182 Évolution du diamètre de pore dans la simulation d'une éprouvette de gypse saccharoïde pur avec une distribution homogène de la porosité

Les résultats de ce premier modèle numérique permettent de modéliser la dissolution du gypse de manière proche à ce qui a été observé expérimentalement en termes de régression de surface et dans l'évolution du diamètre de pore. La dissolution prend ici un aspect uniforme à l'image de l'éprouvette modélisée, ce qui empêche le développement de chemin préférentiel. L'absence d'apparition de ces conduits conduit à une régression de surface légèrement plus importante que celle obtenue expérimentalement (1 à 2 mm). Cette régression est retranscrite dans le même ordre de grandeur avec un gradient de dissolution se mettant en place sur environ 8 mm, ce qui peut correspondre aux observations faites avant la mise en place de la dissolution hétérogène. La mise en place de variable dans la distribution des paramètres pourraient amener à développer ses conduits préférentiels.

#### b) Variabilité des paramètres

Dans ce point, il est testé la réponse du modèle et de sa sensibilité en changeant une partie des valeurs dans les paramètres utilisés. Ainsi il a été effectué le même calcul que décrit ci-dessus avec le changement d'une variable. Chaque variable modifiée est calculée plusieurs fois pour différentes valeurs. Cela dans l'objectif de mieux rendre compte de la sensibilité du modèle proposé à ces variables. Il est ainsi testé les paramètres suivants :

- porosité,
- diamètre de pore,
- la perméabilité.

## CHAPITRE 4 : MODELISATION NUMERIQUE

L'évolution de la dissolution en modifiant la porosité totale est synthétisée dans la Figure 183. Une première information est que pour une porosité inférieure à 6% ( $\Phi=0,06$ ), le calcul ne converge pas au-delà de 20 jours de simulation. Les porosités initiales inférieures à 10% montrent une plus grande dissolution en profondeur de dégradation atteinte et en porosité maximale ( $\Phi=0,9$ ). Pour les porosités initiales supérieures à 10 %, la profondeur d'altération totale ( $\Phi=0,9$ ) n'évolue pas et s'arrête à 4 mm de hauteur. Cette augmentation de la profondeur d'altération est liée à la vitesse du fluide qui pour une même pression en entrée du système propage la perturbation plus loin pour un volume inférieur de porosité.

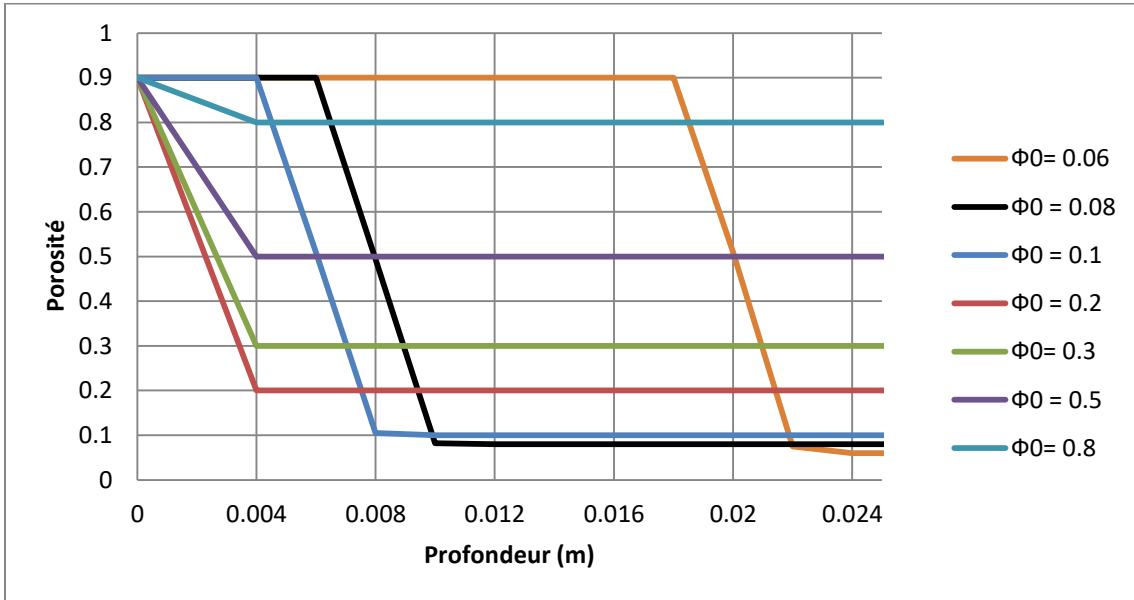


Figure 183 Évolution de la dissolution en fonction de la porosité initiale.

La Figure 184 représente l'évolution de la propagation du gradient d'altération en fonction du diamètre de pore introduit. Plus le diamètre de pore initial est important, moins la dissolution se développe en profondeur. Il est intéressant de noter que, quelle que soit la valeur initiale appliquée, elle double pour obtenir une dissolution totale ( $\Phi=0,9$ ).

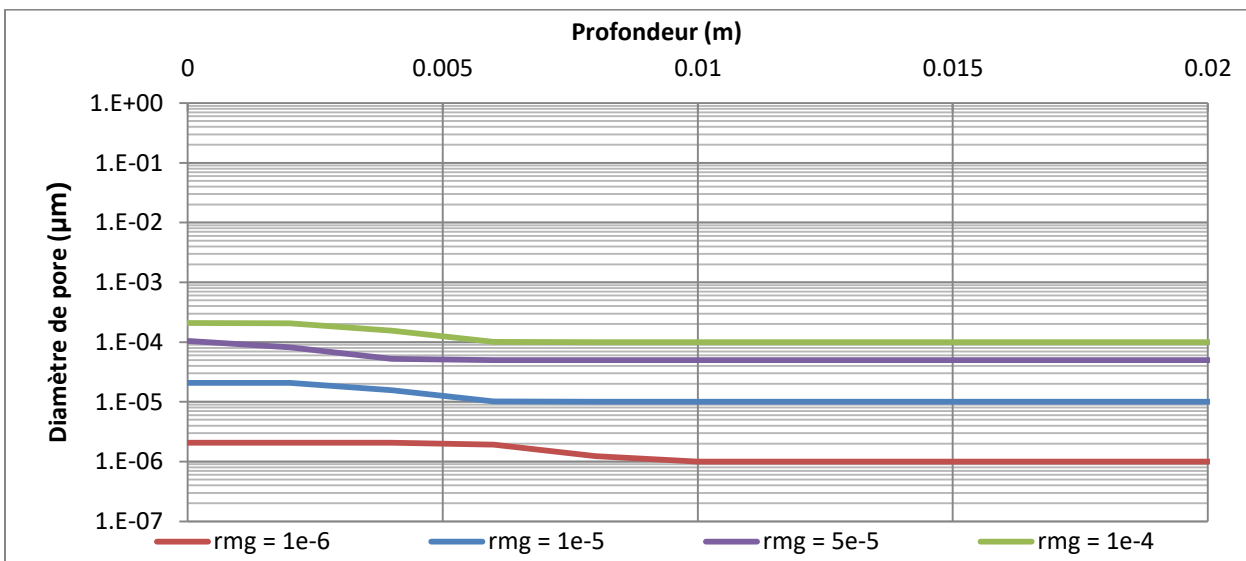


Figure 184 Évolution de la dissolution en fonction du diamètre de pore.

Cette réduction de la dissolution avec l'agrandissement du diamètre de pore s'explique par l'évolution de la surface de réaction. Bien que cette surface augmente avec le diamètre de la sphère considérée, le nombre de pore va diminuer pour un même volume de vide. Ainsi pour

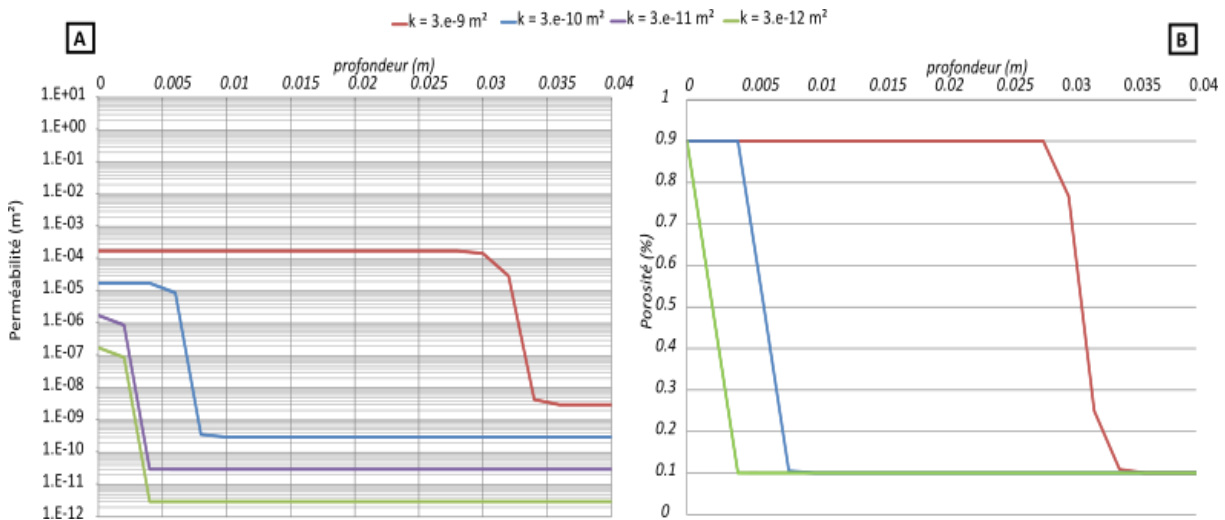
## CHAPITRE 4 : MODELISATION NUMERIQUE

une porosité fixée à 10%, l'augmentation de la surface de réaction avec l'augmentation du diamètre ne suffit pas à compenser la réduction du nombre de pores nécessaires pour définir le volume de vide initiale (Tableau 57). Pour rappel, le nombre de pore est déterminé au début du calcul puis est constant, la dissolution se faisant à partir des surfaces disponibles dans la porosité. Comme pour la porosité discutée ci-dessus, la largeur du pore va avoir un rôle sur la vitesse d'accélération en réduisant le diamètre.

**Tableau 56 Détermination de la surface réactive en fonction du diamètre de pore pour une porosité de 10%**

Diamètre de pore (m)	Volume d'un pore (m <sup>3</sup> )	Surface d'un pore (m <sup>2</sup> )	Nombre de pore	Surface totale (m <sup>2</sup> )
1.00E-04	4.19E-12	3.14E-08	2.39E+10	750
1.00E-05	4.19E-15	3.14E-10	2.39E+13	7500
5.00E-05	5.24E-13	7.85E-09	1.91E+11	1500
1.00E-06	4.19E-18	3.14E-12	2.39E+16	75000

Le calcul est également effectué pour différentes valeurs de perméabilité initiale. L'effet de la perméabilité sur l'évolution du front de dissolution est synthétisé dans la Figure 185. Quel que soit la perméabilité définie initialement, elle augmente d'un facteur  $1.10^5$  lorsque la porosité atteint sa valeur limite (0,9). Des valeurs de perméabilité inférieure à  $1.10^{-10}$ , ne permettent pas sur la période considérée d'atteindre la porosité maximale sur la période de simulation (60 jours). Dans ce cas le front de dissolution n'est pas affecté en termes de profondeur atteinte. Si la perméabilité initiale est suffisante pour que la porosité atteigne sa valeur limite en cours de calcul, alors le front de dissolution progresse du fait de l'écoulement hydraulique.



**Figure 185 Évolution de la propagation du front de dissolution en fonction de la perméabilité initiale. A : perméabilité. B : porosité**

### **c) Résultat pour une éprouvette avec une porosité hétérogène**

Un essai de distribution d'une porosité non homogène est effectué pour essayer de générer des chemins préférentiels. Il est appliqué au maillage une loi de distribution aléatoire de la porosité. La porosité moyenne utilisée est toujours de 10% avec une amplitude de +/- 2% de porosité, soit l'écart type obtenu lors de la caractérisation du faciès en porosimétrie à l'eau (voir chapitre 3.A). La distribution réalisée est présentée dans la Figure 186.

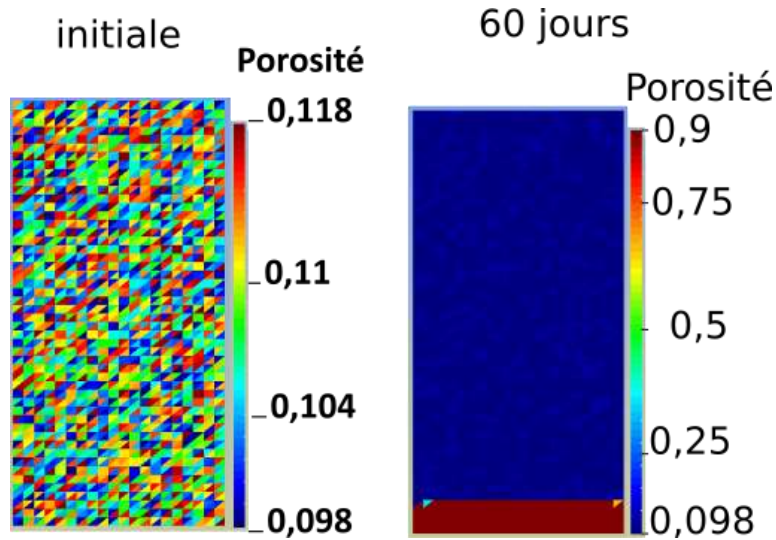


Figure 186 Distribution hétérogène de la porosité dans une éprouvette numérique de gypse avant (a) et après (b) simulation de percolation d'eau pure pendant 2 mois.

La mise en place de cette hétérogénéité initiale ne permet pas de générer de dissolution hétérogène. Elle affecte néanmoins la dissolution avec une augmentation de la régression de la surface de 2 mm à 1 cm (Figure 180 et Figure 187). Le front de dissolution affectant la porosité atteint 1,5 cm. Ainsi ce modèle ne semble pas suffire pour expliquer, à partir des résultats expérimentaux obtenus, la mise en place des chemins préférentiels dans notre modèle. Il se peut que la raison en soit la finesse du maillage ou la taille du modèle ou les paramètres de couplage HCM adoptés. En effet les chemins préférentiels apparaissent toujours avec un espacement caractéristique et dans des conditions très spéciales qu'il faut pouvoir bien respecter et reproduire dans le modèle numérique.

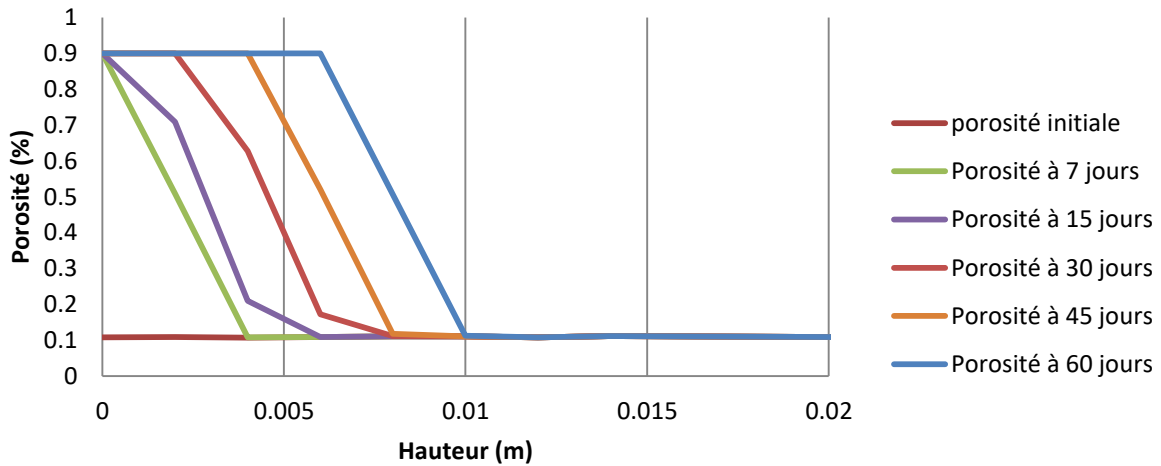


Figure 187 Évolution de la porosité dans la simulation d'une éprouvette de gypse saccharoïde pur avec une distribution hétérogène de la porosité

Le développement d'une distribution des diamètres de pore en fonction de plusieurs diamètres et de manière représentative (en quantité) du résultat d'un essai de porosimétrie par intrusion de mercure pourrait peut être amener à l'apparition dans le calcul de chemins différentiels. Ce qui serait cohérent avec les variations de surface réactive et de leur effet sur la dissolution. Cette idée est similaire à ce qui a été proposé par (Ha, 2012) (voir chapitre 1.D). Cette piste n'a pas été explorée dans ce travail l'analyse des conditions nécessaires pour la reproduction des chemins préférentiels constitue une perspective intéressante pour étoffer le système proposé et développer le travail ici présenté.



**Synthèse :** l'ensemble d'équations proposées et présentées en première partie de ce chapitre apparaît capable de décrire l'évolution d'une éprouvette de gypse soumise à une altération par percolation de même nature que lors de la campagne expérimentale. Le taux de récession et l'évolution des paramètres comme le diamètre de pore de l'ordre de 20  $\mu\text{m}$ . Toutefois, la mise en place d'une porosité uniforme entraîne une dissolution par régression de surface sans évolution interne de la masse de gypse. L'éprouvette modélisée étant parfaitement uniforme, le développement des chemins préférentiels ne peut se développer.

## II. Évolution d'une structure géotechnique sur du gypse

### 1) Description du modèle

Le cas modélisé représente un massif théorique tel qu'il pourrait être rencontré en Ile-de-France (Figure 188 et Figure 189). La hauteur de la couche de gypse modélisée est de 20 m, soit l'épaisseur de la première masse (Vachat, 1982; Toulemont, 1986). La couche modélisée est en contact avec une couche de calcaire où il ne se déroule pas de dissolution. La dissolution chimique proviendra de la propagation d'un front de fluide sous saturée depuis la surface du calcaire. La surface de la couche gypseuse n'est soumise à aucun phénomène d'altération, la réaction se déroulant uniquement à l'interface avec le calcaire. Ce fluide sous saturée est supposée pénétrer en continu à l'image de ce que générerait une fuite d'eau non identifiée. Afin de modéliser l'effet de la dissolution du gypse sur une structure géotechnique, il est intégré au modèle un bâtiment (sous la forme d'une dalle) de 10 m de long et chevauchant la couche de gypse et de calcaire de manière égale.

L'objectif est ici de modéliser l'effet de la dissolution d'une masse de gypse à l'échelle du massif et la réaction d'une structure placée sur cette strate de gypse. La dissolution de surface que généreraient les précipitations sur une couche de gypse à nue n'est pas modélisée. La structure géotechnique modélisée ici est un bâtiment exerçant une contrainte initiale de 3 MPa. Afin de ne pas entraîner d'interaction entre la couche de calcaire et la couche de gypse avant l'arrivée de la perturbation, il est intégré une couche « gypse altéré » à l'interface. Cette couche est peu épaisse (de l'ordre de 10 cm, soit une rangée de maille). Les propriétés attribuées à cette couche sont identiques à celle du gypse mais ne participent pas à la dissolution et ont un rôle de tampon.

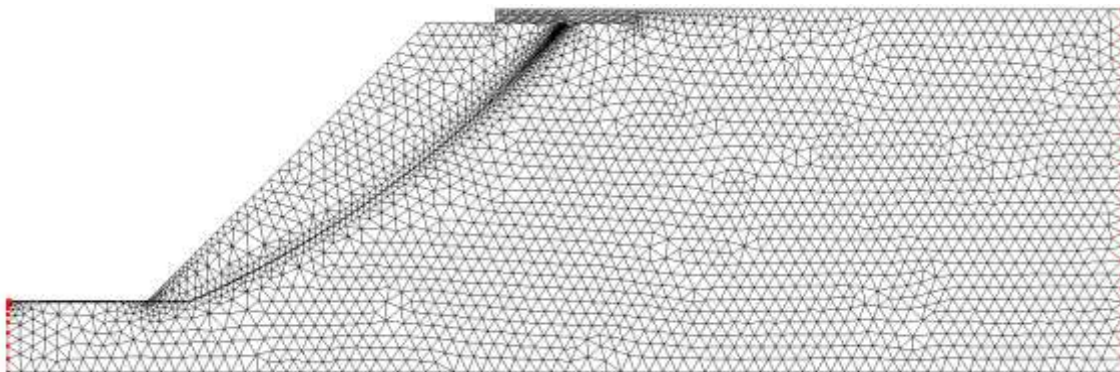


Figure 188 Maillage mise en place et conditions aux limites fixant le déplacement  $U_x = 0$  (en rouge)

## CHAPITRE 4 : MODELISATION NUMERIQUE

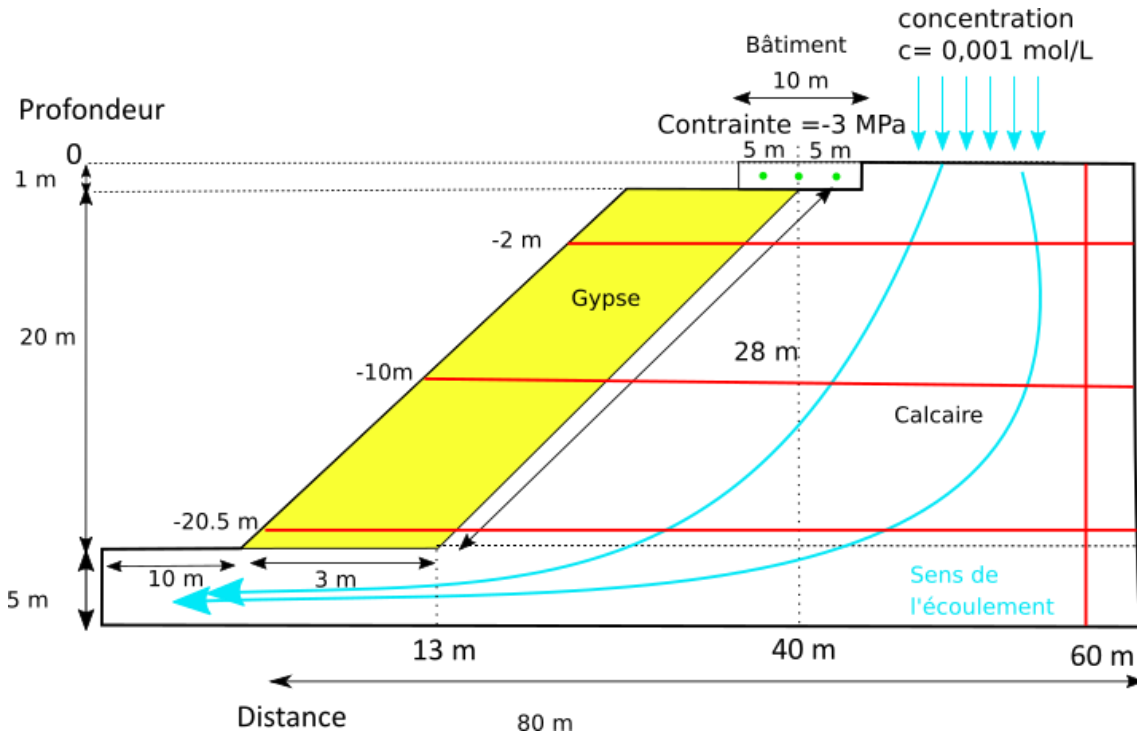


Figure 189 : Schéma du massif avec la perturbation chimique et la contrainte du bâtiment. Les axes rouges représentent les positions des coupes présentées ci-dessous. Les points verts, les points de suivi du déplacement.

Les conditions aux limites sont des déplacements égaux à 0 en x sur les extrémités du calcaire en verticale et 0 en y sur la limite inférieure du massif. Les paramètres retenus en entrée du modèle sont regroupés dans le Tableau 57 et sont similaires à ceux utilisés dans le cas précédent pour la modélisation d'une éprouvette de gypse saccharoïde pur. Il est ici activé la partie mécanique via l'évolution du paramètre de cohésion tel que décrit dans la première partie de ce chapitre. Afin d'accélérer les calculs, la perméabilité du calcaire est augmentée à  $2.10^{-3} \text{ m}^2$ . Il ne participe pas à la dissolution, ainsi l'augmentation de sa perméabilité permet simplement de faire accélérer la propagation de la perturbation dans le massif, pour initier plus rapidement la dissolution et favoriser la réalisation du calcul.

Tableau 57 Paramètres d'entrée utilisés pour la modélisation du gypse dans la dissolution d'un massif.

paramètre	Valeurs du paramètre
Coefficient de diffusion ( $\text{m}^2.\text{jours}^{-1}$ )	$8.64\text{E}^{-05}$
Taux de dissolution pour une vitesse de fluide nulle ( $\text{mol}.\text{m}^{-2}.\text{jours}^{-1}$ )	1470
Effet de la vitesse sur le taux de dissolution ( $\text{mol}.\text{m}^{-2}.\text{jours}^{-1}$ )	5184
$K_h$ ( $\text{mol}.\text{m}^{-2}.\text{jours}^{-1}$ )	$6.10^{-5}$
Perméabilité ( $\text{m}^2$ )	$2.10^{-16}$
Porosité (%)	0.10
Diamètre de pore (m)	$5.10^{-5}$
Volume molaire ( $\text{m}^3/\text{mol}$ )	$7.5.10^{-5}$
Concentration de saturation ( $\text{mol}.\text{L}^{-1}$ )	$15.10^{-2}$
Coefficient de Poisson	0.28
Cohésion initiale (MPa)	4.00
Cohésion limite (MPa)	0.20
Angle de frottement (°)	10

## 2) Résultats

### a) Initiation de la dissolution et progression de la perturbation chimique

Le calcul est réalisé initialement sur une période de 300 000 jours (environ 800 ans) avec un pas de temps de cent jours. La propagation de la perturbation chimique dans le plan vertical du massif ( $x=60$  m) est représentée par la Figure 190.

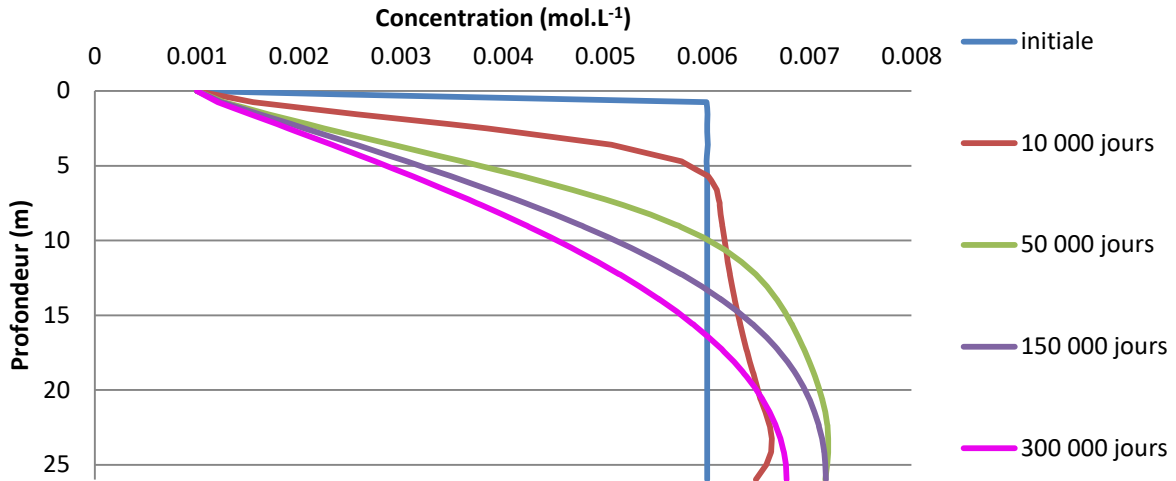


Figure 190 Progression de la perturbation chimique dans le calcaire sur 300 000 jours.

Le front d'avancement est tracé sur un même segment dans la couche de calcaire. La perturbation avance de manière uniforme sur l'ensemble de la couche de calcaire et affecte l'ensemble du massif sur la période de calcul effectuée. La perturbation fait migrer la concentration initiale dans la couche de calcaire de manière verticale avec une augmentation locale de la concentration en avant de l'arrivée de la perturbation chimique. Cette augmentation est un phénomène similaire à celui décrit dans le cas précédent sur une éprouvette numérique. Il s'agit d'un effet numérique lié au maillage et au « lessivage » de l'eau saturée dans le calcaire.

La dissolution s'initie dès le premier pas de temps de calcul et ce quelle que soit sa durée ou la finesse de pas de temps sélectionné. Elle commence sous le « bâti », à 2 m de profondeur à l'interface entre gypse et calcaire (Figure 191) suite à une diminution très faible de la concentration ( $0,001 \text{ mol.L}^{-1}$ ).- Cette diminution de la concentration est transitoire et revient à la valeur initiale dans le déroulement du calcul. La dissolution reste néanmoins active et se développe dans cette zone. Cette réduction de la concentration génère une augmentation de la porosité de l'ordre de 10% (de 10 à 20%) sur les 300 000 jours de la simulation. La dissolution sur l'ensemble du temps de calcul affecte 1,5 m de profondeur de la couche de gypse. Cette épaisseur (plan horizontal) de 38 à 39,5 m se dissout préférentiellement suivant une régression de surface avec l'augmentation de la porosité jusqu'à la valeur limite (0,9, voir partie A du chapitre) avant de progresser plus loin. La zone en cours de dissolution présente une légère sursaturation ( $+ 0,0002 \text{ mol.L}^{-1}$ ) qui pourrait correspondre à la libération des éléments de la phase solide vers la solution avant qu'ils ne soient transportés ou à une fluctuation purement numérique.

Une fois la dissolution initiée, la porosité évolue par une augmentation de son volume suivant un phénomène de surface plutôt que par la formation d'un gradient de dégradation en

profondeur. Ce qui est concordant avec l'évolution de l'éprouvette modélisée précédemment. La dissolution et l'augmentation de la porosité se propageant verticalement le long de l'interface gypse-calcaire (Figure 193). Ce qui peut être expliqué par la faible perméabilité du gypse qui freine la propagation de la perturbation vers le centre de la couche. La dissolution se développe ainsi le long de l'interface.

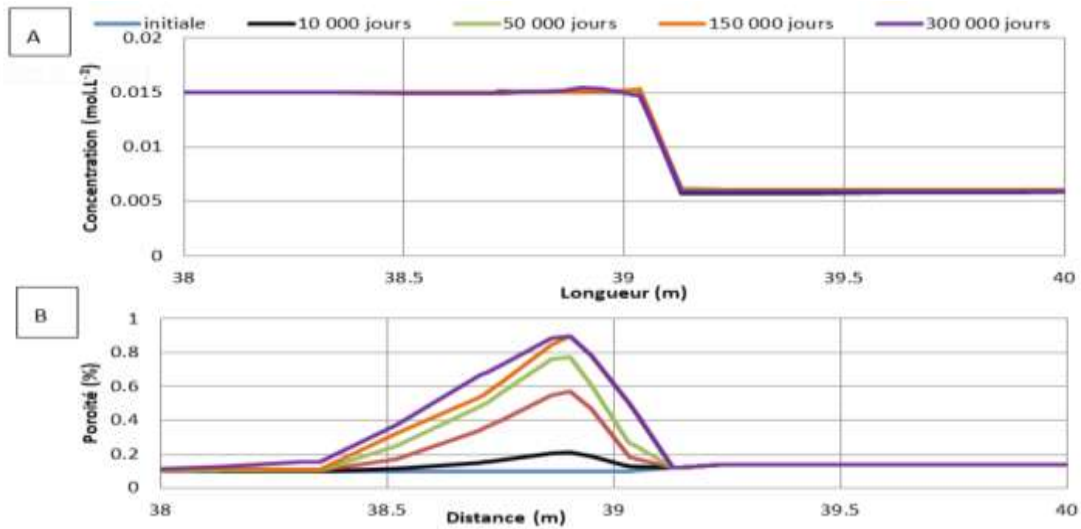


Figure 191 Évolution de la concentration (A) et de la porosité (B) à l'interface gypse – calcaire à 2 m de profondeur

Cette perturbation est un phénomène numérique ayant lieu en début de calcul avec des hétérogénéités très faibles de concentration qui initie une dissolution locale et lente, de l'ordre de 0,5% sur les 1 000 premiers jours et affecte une seule maille. Ce phénomène apparait ainsi comme une évolution du modèle numérique à partir de faibles variations qu'il a généré automatiquement à partir des fluctuations des paramètres. Par exemple, l'attribution d'une porosité de 0,1 à 1 maille peut être prise en compte dans le logiciel comme 0,9999%.

La mise en place du front d'altération et l'augmentation de la porosité entraîne une accélération de la vitesse d'écoulement dans les zones affectées par le front d'altération (Figure 192). La vitesse initialement nulle, compte tenu de la faible perméabilité du gypse, augmente ainsi jusqu'à une vitesse de l'ordre de 1 à  $3.10^{-6}$  m/jours dans les zones totalement dissoutes ( $\Phi=0.9$ ).

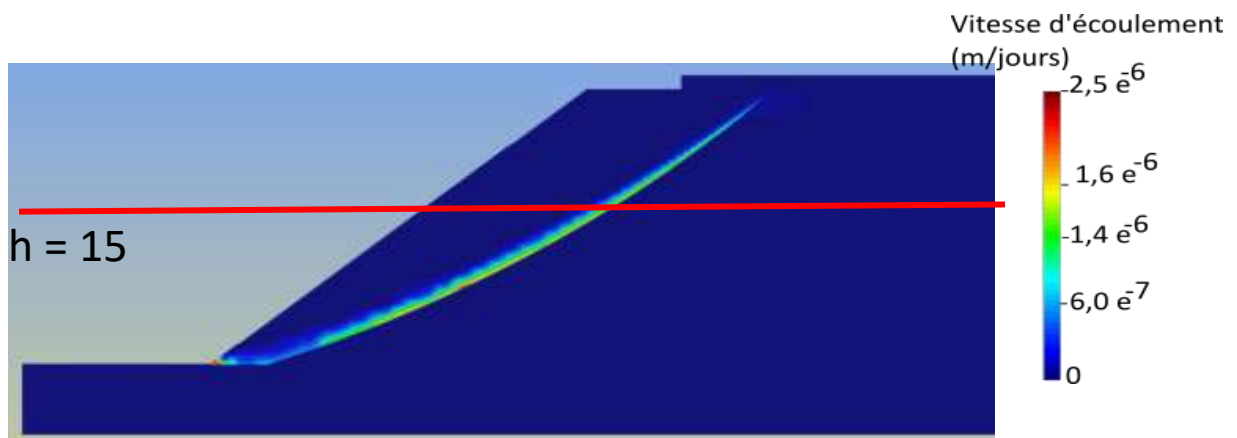


Figure 192 Vitesse d'écoulemnt du fluide après 500 000 jours de dismulation

## CHAPITRE 4 : MODELISATION NUMERIQUE

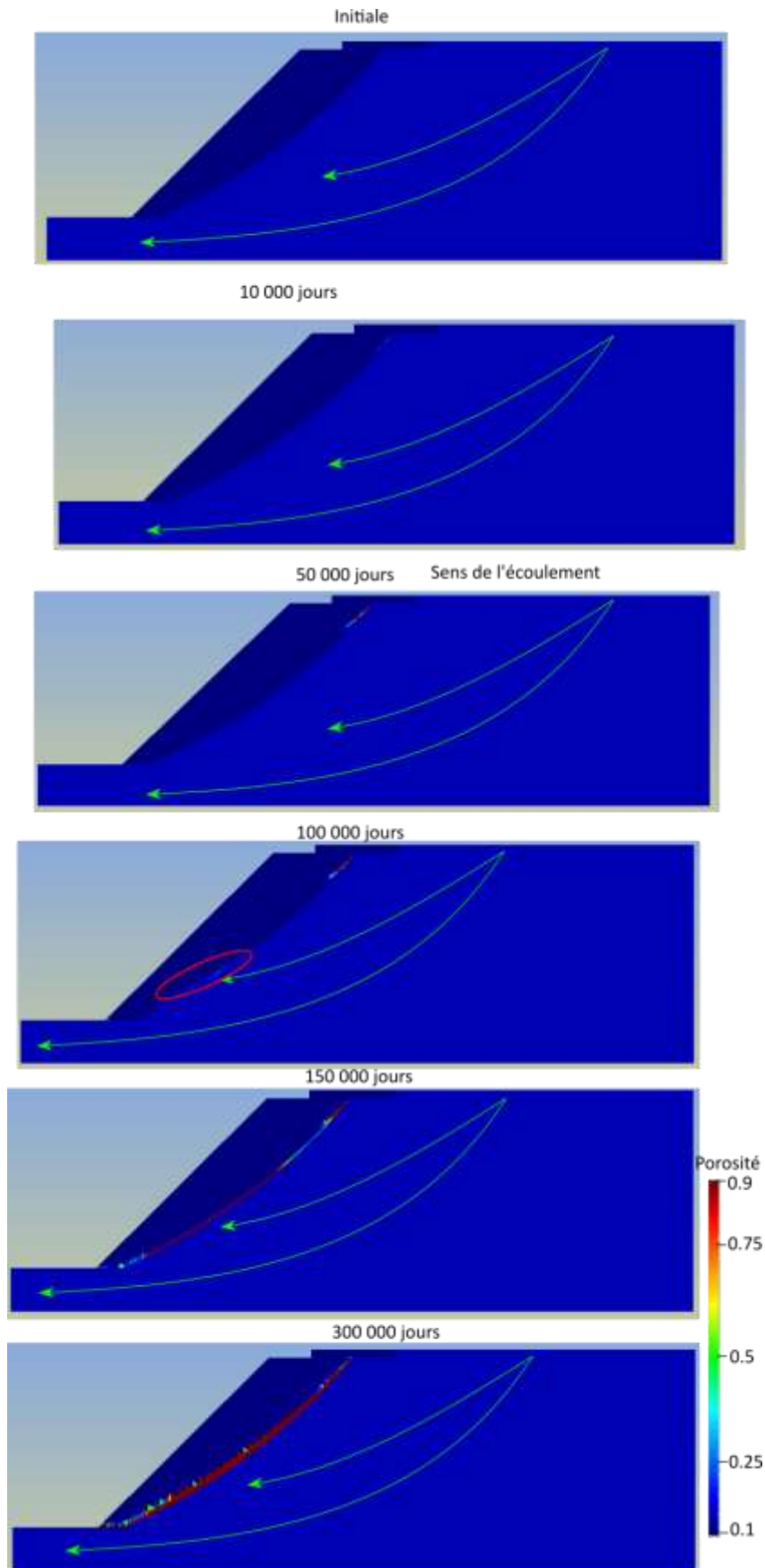


Figure 193 Évolution de la porosité à l'interface calcaire-gypse par dissolution du gypse de 0 à 300 000 jours

L'augmentation de la porosité semble canaliser l'écoulement. En effet, la vitesse diminue dans la zone de calcaire (à droite) au fur et à mesure de la dissolution du gypse Figure 194. Il se forme ainsi un conduit canalisant l'essentiellement de l'écoulement et diminue fortement (proche de 0) l'écoulement dans le calcaire.

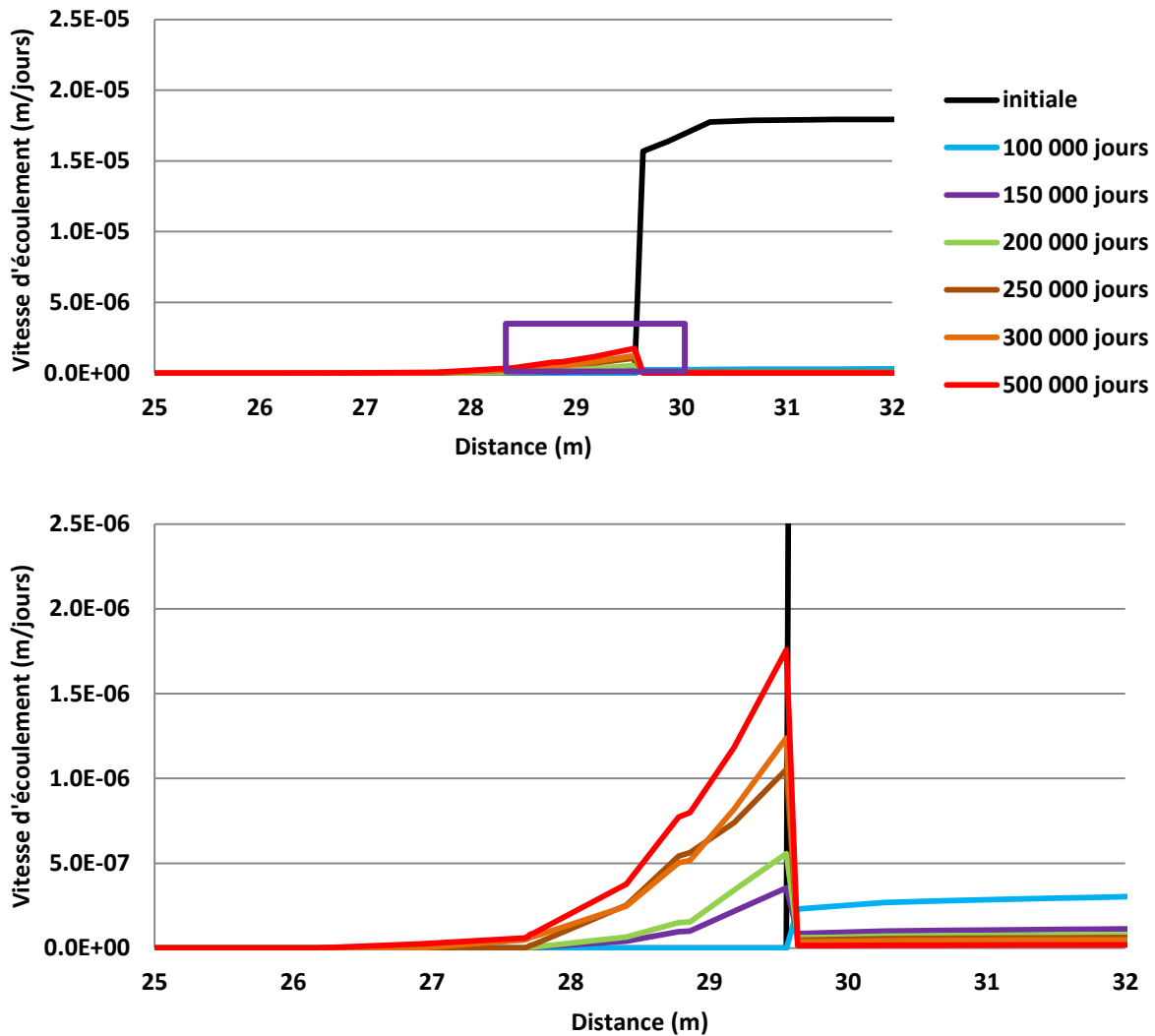


Figure 194 Evolution de la vitesse d'écoulement avec l'avancement de la simulation.

**b) Évolution en partie basale de la couche de gypse**

Après 100 000 jours de simulation (274 ans), une seconde zone de dissolution apparaît dans la partie basale de la couche de gypse (cercle rouge de la Figure 193). La dissolution s'initie ici par l'arrivée de la perturbation chimique. La dissolution s'effectue d'une manière similaire à la première zone de dissolution avec une augmentation initiale (+0,001 mol/L) de la concentration (Figure 195A). Cette fluctuation de concentration est liée au faible avancement de la dissolution qui limite la possibilité de transporter les éléments dissous, le renouvellement en fluide sous saturé est donc ralenti et les produits de réactions s'accumulent. Une fois la dissolution ayant suffisamment augmenté la porosité, le renouvellement de fluide se fait plus rapidement et permet de maintenir la dissolution de manière continue et d'éliminer les produits de dissolution au fur et à mesure. À 150 000 jours, la porosité a déjà augmentée avec la dissolution jusque 30% (Figure 195B). C'est à ce moment que la concentration diminue. Il est observé une accélération de la dissolution à partir de ce point et la progression en profondeur de la dissolution. La porosité passe ainsi de 40% à 65% entre 200 000 et

## CHAPITRE 4 : MODELISATION NUMERIQUE

250 000 jours et de 65 à 90% entre 250 000 et 300 000 jours. La dissolution affecte une épaisseur de 1,5 m environ tant que la porosité ne dépasse pas 50%. Une fois ce seuil atteint, l'on observe une progression en profondeur de la dissolution jusqu'à une épaisseur de 3,5 m de zone affectée par la dissolution en fin de simulation (Figure 195B). La dissolution se diffuse également de manière latérale le long de l'interface. L'ensemble de la couche de gypse ayant été affectée par la dissolution pendant la période de simulation sur la zone d'interface.

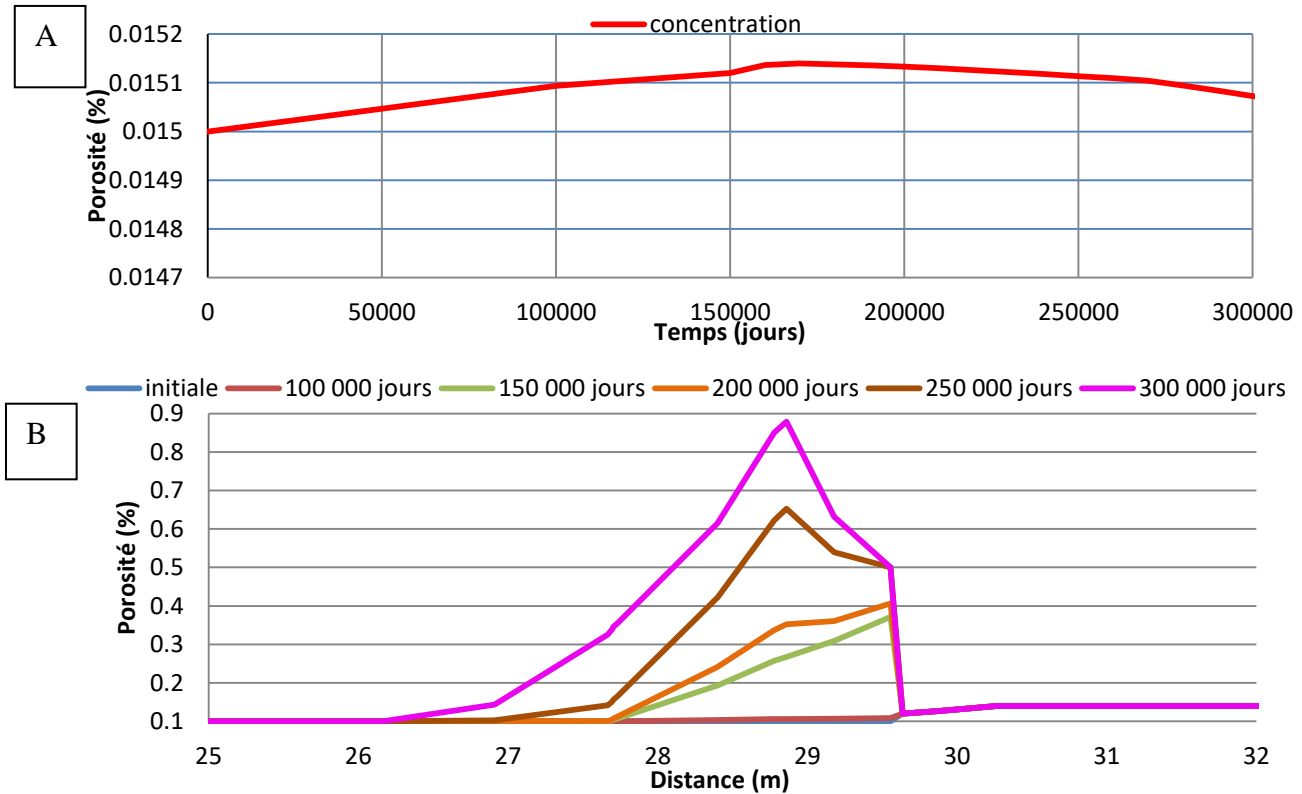


Figure 195 Évolution de la concentration (A) et de la porosité (B) à l'interface gypse – calcaire à 16 m de profondeur

Afin de valider l'augmentation de la concentration en éléments dissous dans la zone réactive, le calcul a été effectué jusqu'à 500 000 jours de simulation. Cette augmentation est constante même une fois la phase solide complètement éliminée (Figure 196). L'accumulation des produits de dissolution dans la zone dissoute est faible de l'ordre de  $0,0004 \text{ mol.L}^{-1}$  sur la période de simulation. Il pourrait s'agir d'une quantité d'espèces ioniques que le transport ne peut éliminer immédiatement ou d'une partie des espèces en solution provenant des couches supérieures et transportés dans la zone inférieure. Cet effet d'une légère sursaturation concorde avec les travaux de Toulemont(1986) où les couches de gypse *in situ* du bassin parisien se dissolvent en périphérie (par régression de surface) et le « cœur » de la lentille de gypse est préservé par la saturation du fluide dans les zones dissoutes avec une migration lente des produits de la réaction de dissociation. Ici, la dissolution se poursuit car la perturbation chimique, qui est très fortement sous saturée, est exercée de manière constante. Une telle perturbation est peu probable en conditions réelles mais est utilisée ici pour tester ce modèle.

L'évolution de la porosité, une fois la dissolution initiée, évolue rapidement jusqu'à un palier de 30%, où la dissolution semble ralentir. Ce palier dure environ 100 000 jours avant que la porosité n'évolue à nouveau jusqu'à la dissolution complète du gypse.

## CHAPITRE 4 : MODELISATION NUMERIQUE

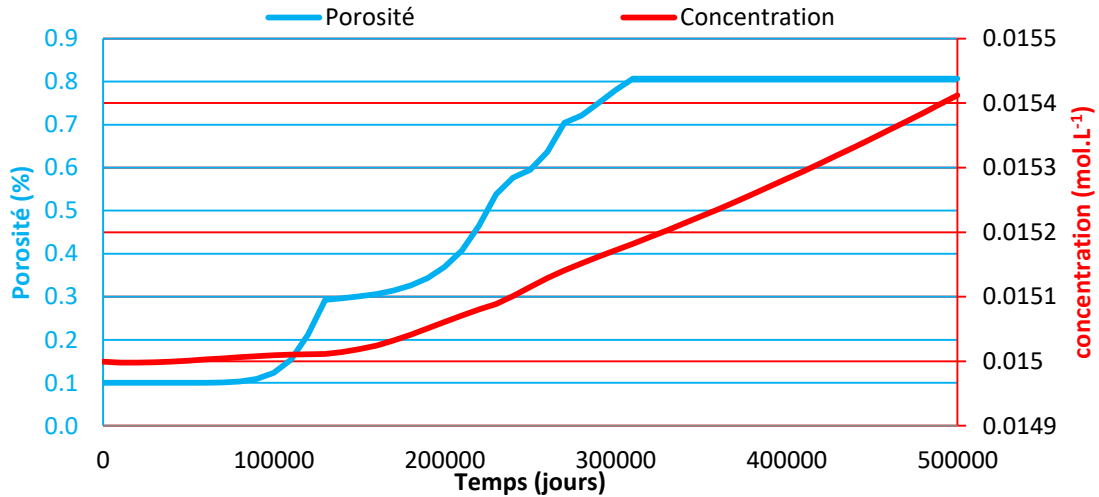


Figure 196 Évolution de la concentration en calcium avec l'avancement de la dissolution

L'évolution des paramètres liés à la porosité évoluent de la même manière que pour le cas précédent (une éprouvette) avec un doublement du diamètre de pore (de  $5.10^{-6}$  à  $1.10^{-5}$  m) et de la perméabilité (de  $3.10^{-10}$  m<sup>2</sup> à de  $1,5.10^{-5}$  m<sup>2</sup>) (Figure 197). Ces évolutions sont cohérentes avec la dissolution. Le développement du diamètre de pore par son doublement est intéressant car il correspond à ce qui a été observé expérimentalement dans les parties basales des éprouvettes en percolation (chapitre 3.B). Toutefois, la dissolution générant un vide complet de ces zones, il serait attendu une perméabilité beaucoup plus importante ainsi que des diamètres beaucoup plus développés. Le diamètre de pore suit une évolution parfaitement similaire à la porosité alors que la perméabilité marque une évolution en palier vers 60 et 70% de porosité. Ces porosités correspondent à la progression du front de dissolution dans la Figure 195.

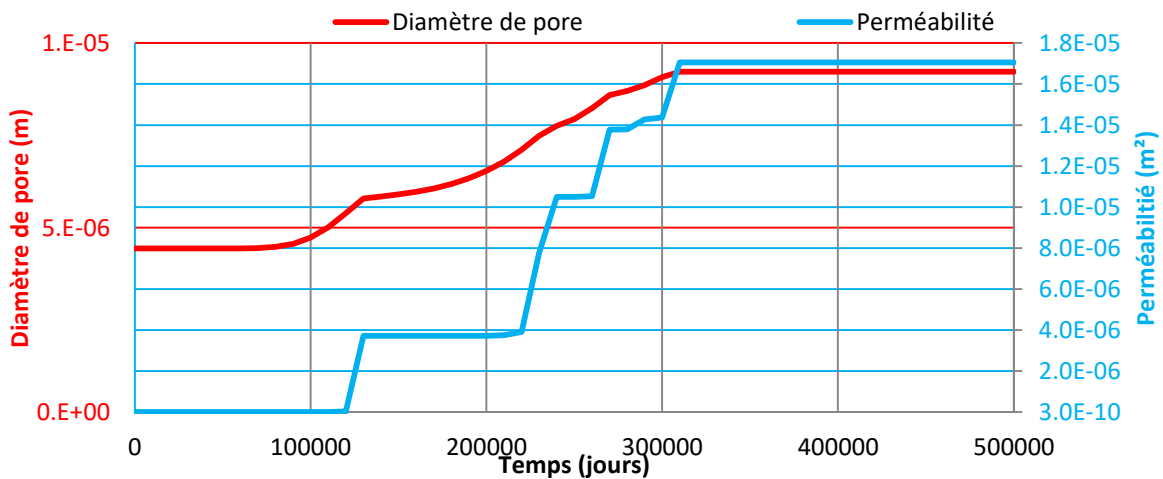


Figure 197 Evolution de la perméabilité et du diamètre de pore avec la dissolution

L'évolution des propriétés mécaniques du milieu poreux est établie à partir de l'évolution du paramètre de la cohésion en fonction de la porosité comme définit dans la première partie de ce chapitre. Lors de la mise en place du modèle, la cohésion initiale du gypse est fixée à 4 MPa mais l'on observe ici sa diminution à 3,2 MPa dès le lancement du calcul et alors que la dissolution n'est pas encore active à cet endroit (Figure 198). Cette réduction de cohésion peut être un effet de la dissolution dans la partie haute de la couche de gypse ou à la contrainte qu'exerce le bâti à proximité de l'interface. En effet, en profondeur de la couche de gypse, la



cohésion n'est pas modifiée pendant la période de simulation et si la dissolution n'atteint pas ces zones (Figure 198).

Une fois la dissolution active et entraînant l'augmentation de la porosité, la diminution de la cohésion est initiée et s'accorde avec l'augmentation du volume de vide. Une fois le palier de 30% de porosité passé, la réduction de la cohésion n'entraîne pas une rupture nette mais une diminution linéaire cohérente avec le comportement plastique du gypse.

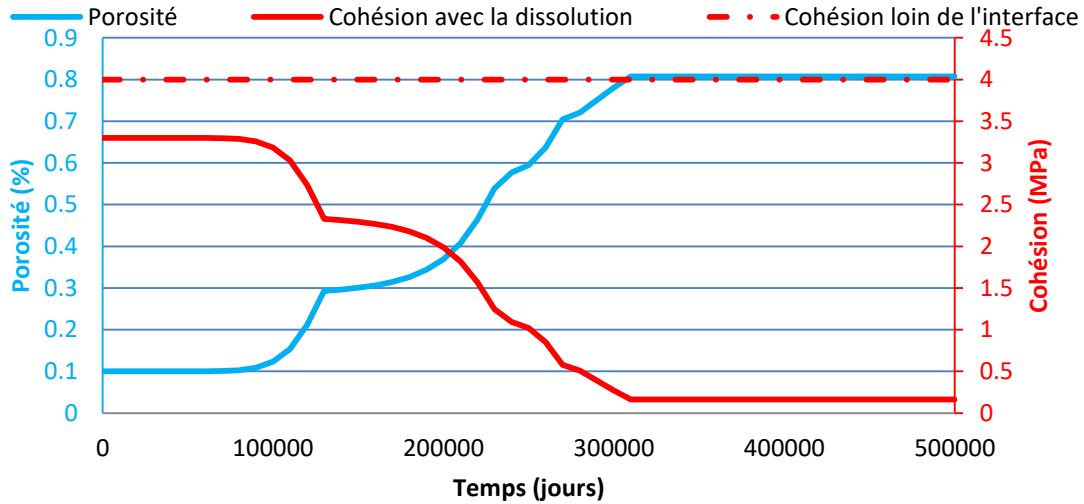


Figure 198 Diminution de la résistance mécanique (via la cohésion) avec la dissolution

L'objectif de cette simulation est d'évaluer le passage d'un modèle centimétrique à décimétrique à partir des équations et des résultats expérimentaux obtenus dans le chapitre précédent. Le changement d'échelle apparaît cohérent avec le premier cas numérique en terme d'évolution avec une augmentation de la porosité avec l'arrivée de la perturbation chimique et l'évolution des paramètres associés (perméabilité, cohésion...).

Un second intérêt est l'évolution d'une structure (ici un « bâti ») placé en chevauchement de la couche de gypse et de son affaissement. La dissolution entraîne l'apparition d'un déplacement de la couche « bâti ». Ce déplacement apparaît à partir de 200 000 jours de simulation (Figure 199). La figure présente l'évolution pendant la simulation de 3 points pris dans la couche bâti, l'un au-dessus du gypse, un second au-dessus de l'interface et le dernier au-dessus de la couche calcaire.

Les déplacements observés sont inférieurs au millimètre sur la période de simulation calculée par le logiciel, ce qui apparaît comme un déplacement réduit de la structure notamment en prenant en compte l'épaisseur de gypse dissous à proximité de l'interface. Le déplacement se concentre sur la partie chevauchant la couche de gypse et à l'interface, la partie au-dessus du calcaire restant stable. Le déplacement apparaît de manière simultanée avec la dissolution à 200 000 jours et s'effectue dans les 2 directions, soit un mouvement rotationnel. Le déplacement est essentiellement vertical avec 0,24 mm de déplacement dans la partie posée sur le gypse du bâti.

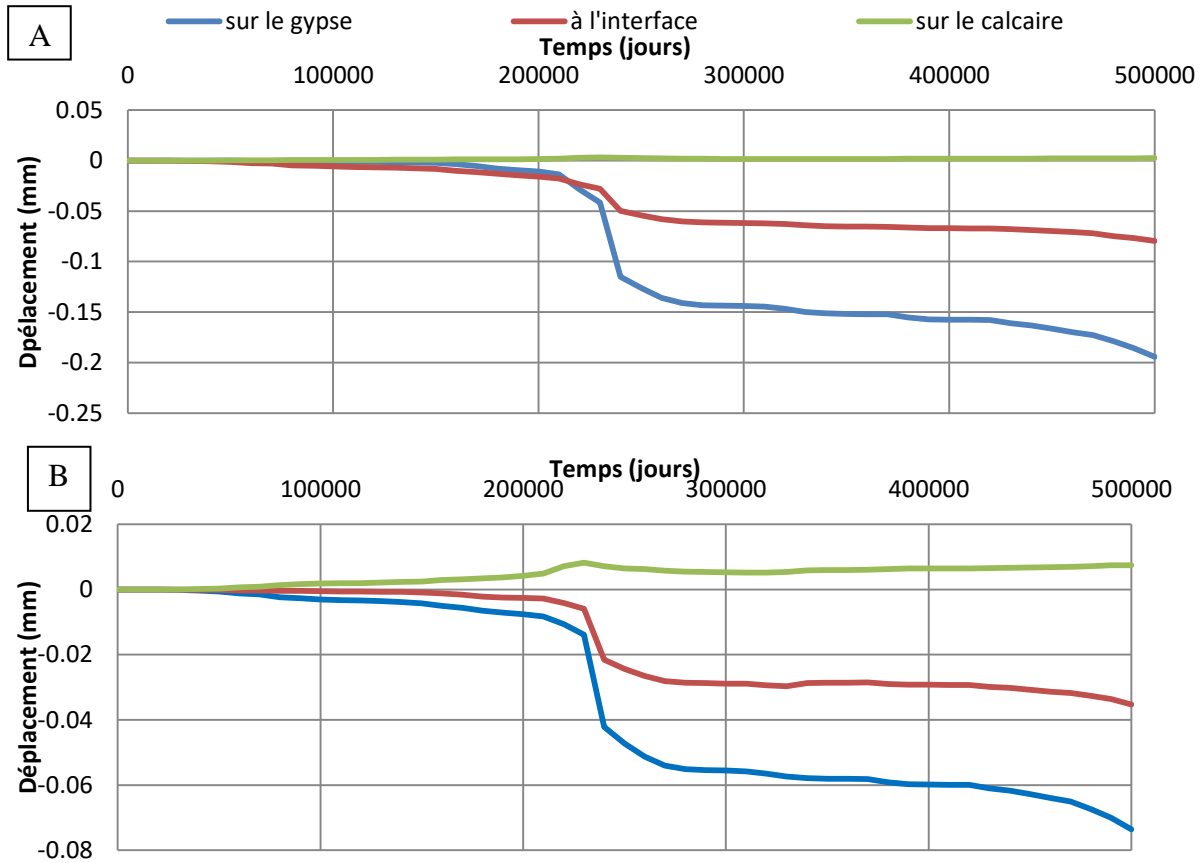


Figure 199 Déplacement de la couche bâti avec la dissolution de la couche de gypse. A : évolution verticale. ( $U_y$ ) B : évolution horizontale ( $U_x$ ).

Ce cas de simulation a permis de réaliser une transposition de notre ensemble d'équation de l'échelle d'une éprouvette à l'échelle du massif. Ce modèle apparaît encore perfectible notamment avec cette anomalie numérique apparaissant dès les premiers pas de calcul mais dont l'effet au final reste limité. La dissolution s'initie après une période de migration (d'environ 100 000 jours) dans la partie basale de la couche de gypse avant d'évoluer latéralement suivant une dissolution par régression de surface. La dissolution en partie basse et non sommitale peut s'expliquer par un effet d'écran de la structure bâti vis-à-vis de l'écoulement. Il apparaît un gradient de dissolution une fois que la porosité au contact du fluide de dissolution dépasse 50%. La porosité, une fois la dissolution active, évolue rapidement jusque 30% avant d'observer un arrêt de dissolution puis une reprise jusqu'à la dissolution totale du gypse pour la maille considérée. Cette évolution est retranscrite dans les autres paramètres que sont la cohésion, la perméabilité et la mécanique (via la cohésion). La relation de la porosité avec le diamètre de pore et la perméabilité est fonctionnelle. Cette dissolution entraîne l'initiation d'un affaissement d'une structure géotechnique à son aplomb. Ce déplacement est peu important (de l'ordre de 0,2 mm) mais permet de valider l'ensemble du modèle et de ses équations.

La simulation est poursuivie jusque 10 000 000 jours pour essayer d'initier une rupture nette. Ces durées de simulations sont bien sur peu réalistes et servent uniquement à éprouver le système d'équations de transport réactif. Après cette période, la dissolution a fortement impacté le massif (Figure 200). La dissolution a consommé presque l'ensemble du gypse sous le « bâti » et entièrement la base de la couche de gypse sur une hauteur d'environ 5m. Le déplacement passe ainsi de 0,25 mm à 0,5 mm.

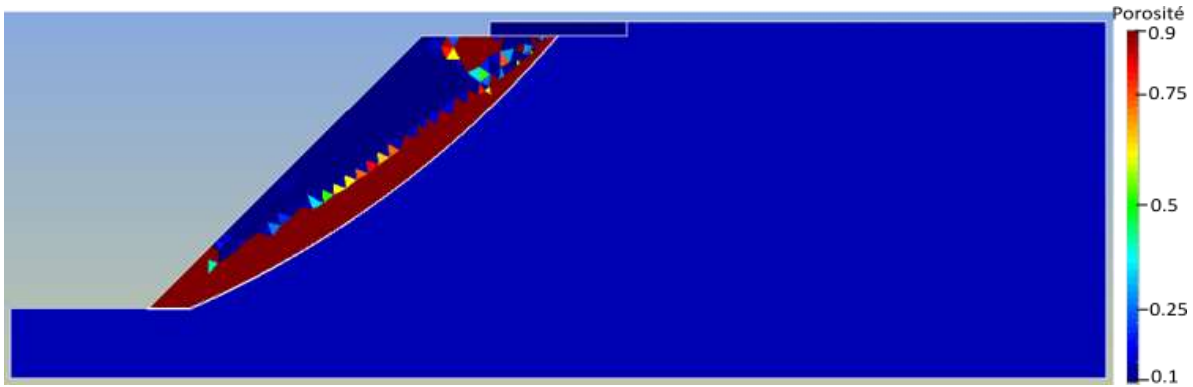


Figure 200 Évolution de la porosité après une période de simulation de  $10.10^6$  jours.

Sur cette période de calcul, la porosité dissous complètement une épaisseur supérieur à 3m de gypse (porosité de 0,9) et partiellement 3,5 m. Ce qui met en évidence la mise en place d'un gradient de dissolution. Dans la Figure 196, il était présenté que la concentration ne faisait que s'accroître avec la dissolution. Cette augmentation s'avère ici temporaire pour une durée de simulation plus longue. Une fois la dissolution achevée en un point, la concentration va ensuite diminuer avec l'élimination des produits de réaction. L'on constate d'ailleurs que l'augmentation de la concentration dans le calcaire diminue fortement, signe que la perturbation chimique progresse. L'augmentation initiale correspondait bien au phénomène numérique décrit pour le cas d'une éprouvette.

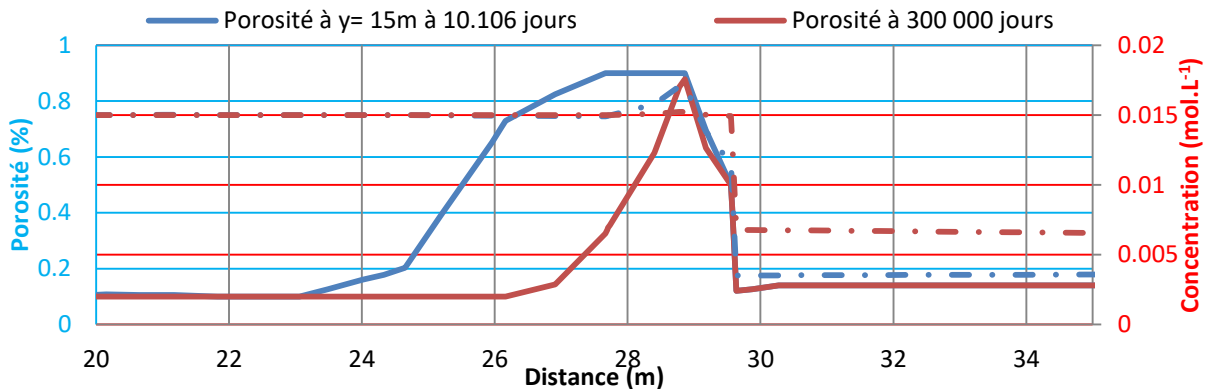


Figure 201 Évolution de la porosité et de la concentration à 11 m de profondeur sur 10 millions de jours.

Le déplacement initié par la dissolution est plus important sur les 2 millions de jours initiaux où se produit la moitié du déplacement (environ 0,25 mm) (Figure 202 et Figure 203). Le tassement s'effectue ensuite de manière constante sur le reste de la simulation. Le déplacement horizontal ( $U_x$ ) évolue suivant une même allure mais dans une amplitude deux fois inférieure au déplacement vertical.

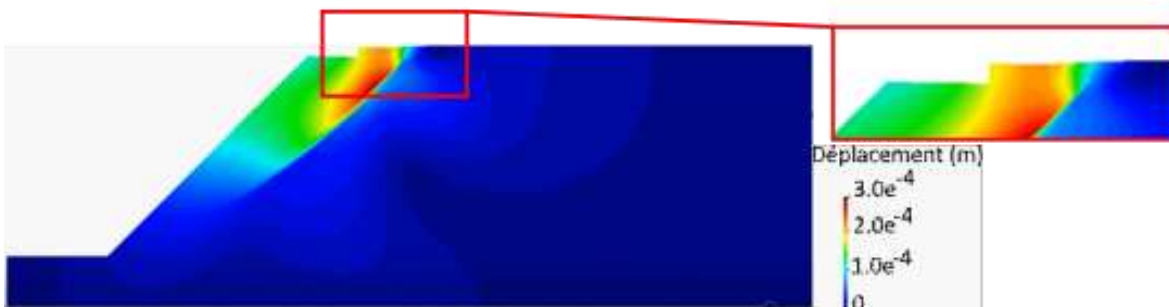


Figure 202 Visualisation de la déformé des déplacements en fin de simulation

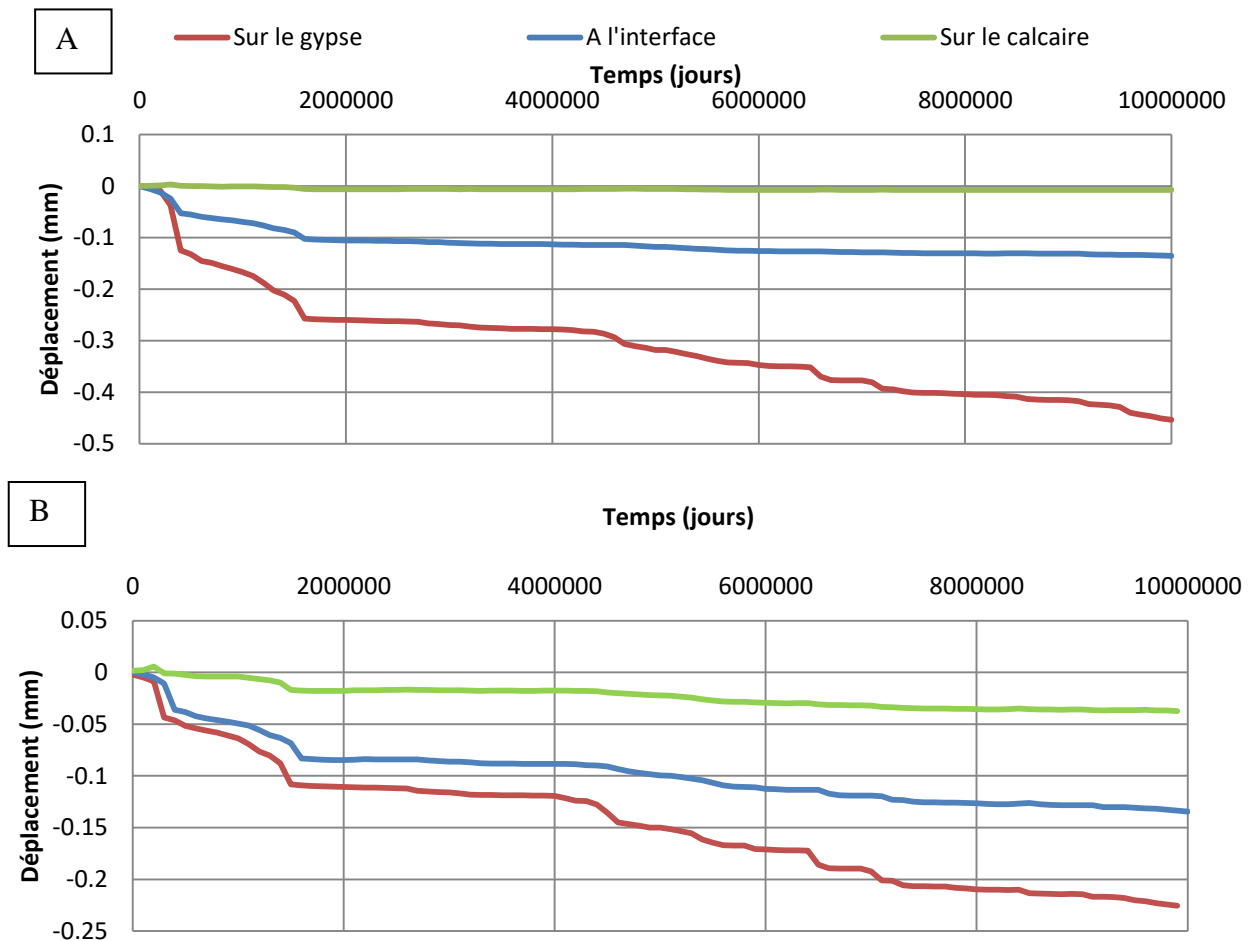


Figure 203 Déplacement de la couche bâti avec la dissolution de la couche de gypse. A : évolution verticale. (Uy) B : évolution horizontale (Ux).

Une fois le déplacement actif, le déplacement est continu sur l'ensemble du calcul et évolue avec l'avancement de la dissolution. Ce déplacement est faible pour l'ensemble de la simulation. La moitié du mouvement est effectué lors de la première partie du calcul (2 millions de jours) avant d'évoluer de manière plus lente. Le déplacement horizontal est 2 fois inférieur à celui de l'axe vertical. Le déplacement d'une manière générale prend l'allure d'un glissement le long de l'interface avec le calcaire au fur et à mesure de la dissolution (Figure 204). Ce type de déplacement sans rupture brutale peut être lié aux propriétés plastiques du gypse bien que la dissolution d'une telle épaisseur devrait conduire à une rupture plus nette. L'activation d'autres paramètres mécaniques comme le frottement ou le module élastique pourrait permettre d'affiner cette évolution.

Le logiciel Disroc dispose d'une fonctionnalité de calcul d'un coefficient de sécurité. Pour rappel, ce coefficient est calculé pour dimensionner un système (ici une structure) en fonction des charges potentielles qu'il devra endurer. Un coefficient de 1 est l'équilibre minimal, une valeur inférieure induira une rupture. Il est en général prévu des marges de sécurité pour que la structure puisse encaisser des événements exceptionnels. Le calcul de ce coefficient indique qu'il est compris entre 7,9 et 10 sur l'ensemble de la période de calcul.

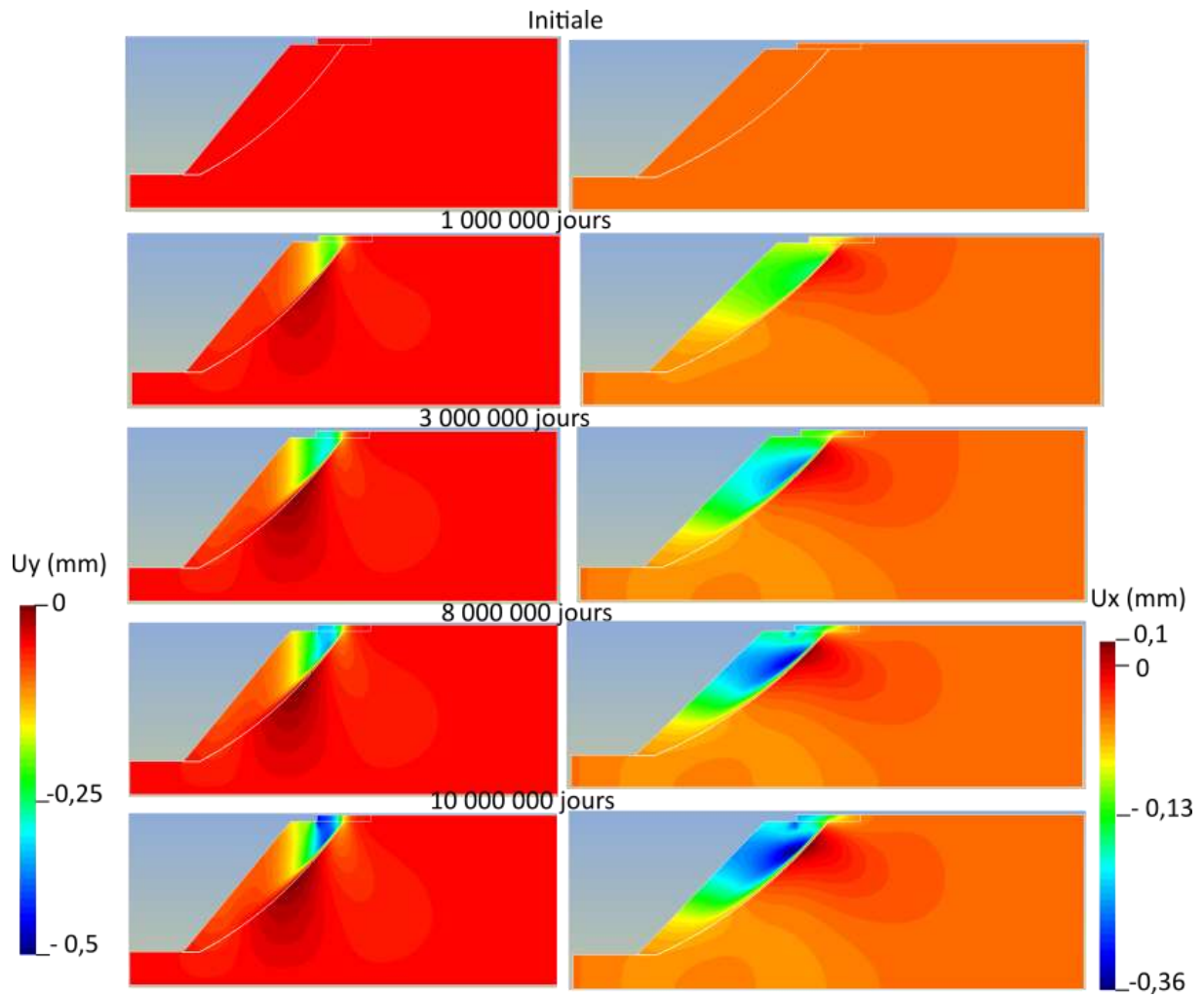


Figure 204 Déplacement verticale sur 10 000 000 de jours

**Synthèse :** afin d'éprouver nos équations, il a été réalisé une simulation à l'échelle d'un massif pour un cas purement théorique. Les équations étant basées sur des résultats expérimentaux à l'échelle de l'éprouvette, cette simulation vise à en estimer le réalisme et la solidité. Ainsi il est pris en compte un changement de couche géologique (calcaire-gypse) où seul le gypse est dissout de manière active, via la propagation d'une perturbation chimique. Il est également ajouté un élément simulant une structure géotechnique chevauchant les 2 couches de matériaux pour évaluer le déplacement et l'effet de la dissolution sur les structures humaines.

La simulation numérique permet d'initier la dissolution chimique avec l'arrivée de la perturbation au contact du gypse et l'évolution de l'ensemble des paramètres associés (cohésion, perméabilité...). La dissolution entraîne la réduction de la résistance de la couche de gypse et finit par affecter la structure géotechnique « bâti ». Les tassements engendrés restent toutefois minimes. L'utilisation du seul paramètre de la cohésion semble ainsi insuffisante pour l'aspect mécanique. L'évolution d'autres paramètres comme l'angle de frottement ou le module élastique pourrait permettre d'améliorer cet aspect. En revanche, le processus de la dissolution apparaît comme satisfaisant. Une fois active, elle évolue principalement de manière régressive et un gradient d'altération apparaît dans un second temps avec une épaisseur limitée. Le calcul a été fait initialement sur une période de 300 000 jours et l'épaisseur de gypse altéré (totalement ou partiellement) était de 3,5m, soit un taux de récession de 1,8 mm/an. Le calcul a ensuite été effectué sur  $10 \cdot 10^6$  jours. L'épaisseur de gypse altéré est alors de 6,5m, soit un taux de récession de 0,24 mm/an.

Cette évolution indique une atténuation de la perturbation avec l'avancement de la dissolution qui entraîne la libération d'ions qui doivent être ensuite transportées, ce qui freine le processus. Le taux de 2 mm/an est similaire à ceux observés dans la littérature pour la dissolution du gypse en zone vadose (Calaforra and Pulido, 1996). Le taux de récession de 0,2 mm/an est quant à lui du même ordre de grandeur que celui obtenu par (Águila et al., 2022), 0,3 mm/an pour la simulation d'un massif de gypse avec une eau sous saturée.

La perturbation chimique a donc un effet de dissolution « fort » à son arrivée au contact du gypse et s'atténue avec la libération des ions en solution.

Noter aussi que les paramètres de cinétiques considérés dans cette analyse conduisent à des temps de dégradation extrêmement longs (centaines de milliers de jours). Nous n'avons pas voulu changer ces paramètres qui sont issus des études bibliographiques et de nos essais. Cependant on peut bien envisager d'autres configurations de matériau (porosité...) et des chargements (charges hydrauliques et chimiques) qui accélèrent ce processus et aboutissent à des dégâts observables sur des périodes de quelques décennies.

## C. Conclusions

Ce chapitre décrit le modèle HMC développé au cours de ce travail de thèse et les simulations réalisées pour l'éprouver. Les paramètres des équations proposées sont établis à partir de données expérimentales comme la porosité totale ou le diamètre de pore obtenu par porosimétrie d'intrusion de mercure. Il est fait l'hypothèse d'une porosité de morphologie sphérique se divisant en un nombre fini de pores du diamètre de pore défini expérimentalement. Ce qui déterminera une surface réactive qui à partir du taux de dissolution expérimentalement obtenu initie la dissolution lorsque le fluide devient sous saturé.

La dissolution augmente la porosité suivant le volume massique de la roche considérée, ici le gypse. À chaque itération, le nouveau diamètre de pore est calculé et la surface de réaction mise à jour. Cette augmentation de la porosité entraîne une accélération de la vitesse d'écoulement (la perméabilité) qui amplifie la dissolution. La vitesse évolue ainsi suivant la relation de Kozeny-Carman. Cet effet d'accélération est pris en compte à partir d'un coefficient expérimental de l'effet de la vitesse sur le taux de dissolution.

Les résultats expérimentaux n'ayant pas permis d'établir une évolution fine des paramètres mécaniques, il a été fait le choix d'établir une relation à partir de résultats bibliographiques. Il a été retenu le paramètre de la cohésion à partir d'un modèle de Mohr-Coulomb élasto-plastique.

Ces équations ont été implémentées dans le logiciel de modélisation par éléments finis Disroc. Il est ensuite réalisé une simulation numérique visant à reproduire à l'échelle de l'éprouvette, l'évolution des échantillons soumis à l'essai de percolation décrits dans le chapitre 3. Les résultats de la simulation présente une régression de surface linéaire et homogène inférieur à 1 cm (environ 8 mm). Ce résultat est légèrement supérieur à l'expérience mais reste dans le même ordre de grandeur. La principale différence provient de la dissolution non homogène en expérimental ayant conduit à l'apparition de chemin préférentiel. L'éprouvette numérique étant parfaitement homogène, il est normal que ce phénomène ne se soit pas développé. Les équations introduites induisent une évolution des paramètres associés à la porosité (perméabilité, diamètre de pore...) avec son augmentation. La perméabilité et le diamètre de pore sont multipliés par 2 avec la dissolution complète du gypse. Ces résultats encourageants pourraient être améliorés ou affinés en essayant d'autres relations ou géométrie de pore.

Enfin une simulation à l'échelle d'un massif avec une interface de dissolution depuis une couche de calcaire a été réalisée. Ce cas numérique vise un double objectif avec le passage à une échelle plus importante de modélisation et l'intégration dans la simulation d'une structure géotechnique sur le gypse. Cette structure géotechnique est mise en place pour évaluer comment notre modèle HMC affecte les bâtiments, en déclenchant des phénomènes d'affaissements.

Les résultats quant à la partie initiation de la dissolution sont similaires à l'échelle de l'éprouvette dans l'évolution de la masse de gypse avec un doublement de la perméabilité et du diamètre de pore. La dissolution s'initie avec l'arrivée d'une perturbation chimique de fluide sous saturée et évolue suivant une régression de surface et un faible gradient de dégradation. L'ensemble de ces éléments ainsi que l'évolution de la cohésion tend à confirmer le modèle établi. Toutefois, sans observation de terrain cette simulation reste fictive mais permet de valider l'objectif d'un modèle HMC efficace. La structure géotechnique quant à elle initie un tassement de faible amplitude (de l'ordre du millimètre) ce qui semble faible. Un changement ou l'activation d'un paramètre supplémentaire (angle de friction...) pour la partie mécanique permettrait d'affiner cet aspect.

## **Conclusion générale et perspectives**





## CONCLUSION ET PERSPECTIVES

L'objectif principal de ce travail était de développer un ensemble d'équations qui, à partir de paramètres déterminés expérimentalement, permet de prendre en compte la dissolution des roches dans l'évolution d'un massif géologique. Ces équations ont été implémentées dans le logiciel de modélisation par éléments finis Disroc et ont permis de reproduire de manière satisfaisante l'évolution d'une éprouvette de gypse soumise à un essai de dégradation par percolation.

Le gypse est une roche de la famille des évaporites. Il est largement répandu, que ce soit en France ou au niveau mondial. Le gypse joue également un rôle dans le déclenchement de glissement de terrain. Il est à l'origine de nombreux aléas cavités à partir de vides naturels (parakarstification) ou anthropiques (fuite de canalisation, carrière souterraine...). L'étude menée au cours de ce travail de thèse a abouti à un modèle couplé hydro-mécanique-chimique (HMC), qui contribue à une meilleure connaissance et gestion de ces aléas.

Le gypse se forme le plus souvent dans un contexte lagunaire par précipitation d'une saumure. La composition de la saumure (salinité, matière organique...) influence fortement la morphologie des cristaux de gypse en termes de sphéricité ou de dimension. Aussi, différents faciès apparaissent comme le gypse albaströïde sous forme de longue plaque massive de plusieurs centimètres de long, le faciès matriciel d'aspect granulaire avec des éléments micro à nanométriques ou encore le gypse saccharoïde également granulaire avec des éléments de quelques centaines de microns. Des interstratifications liées à des dépôts de minéraux secondaires peuvent également être présents.

La texture granulométrique et la morphologie des faciès peu différenciés dans les études de la littérature ont été prises en compte dans ce travail de thèse, ce qui en fait sa spécificité. Si les propriétés mécaniques du gypse, qui est une roche plastique, varient de 2 à 50 MPa en termes de résistance à la compression avec des porosités totales ( $N_t$ ) de 0 à 20%, ces propriétés fortement hétérogènes sont rarement décrites de manière complète et mis en relation avec la microstructure propre à chaque faciès gypseux, ce qui constitue une source d'approximation sur les paramètres d'entrée pour une modélisation HMC à partir de valeurs de la littérature.

Afin d'obtenir les paramètres nécessaires à l'établissement des équations permettant de prendre en compte la dissolution du gypse en considérant les faciès pour prédire l'évolution d'un massif géologique, un important travail expérimental a été effectué sur six faciès de gypse venant pour 4 d'entre eux d'Ile de France (gypse matriciel, saccharoïde pur, albaströïde et fer de lance avec un taux de gypse > 90%) et 2 d'entre eux du Sud Est de la France (gypse orogénique et saccharoïde à interlits avec des teneurs en gypse de 80 à 90%). Ce travail de caractérisation complète et poussée a permis d'établir les bases d'une classification des faciès de gypse à partir de leurs propriétés texturales et granulométriques.

Le faciès albaströïde est massif et non poreux (à l'exception de quelques fissures). Il se compose de cristaux centimétriques blancs et possède le module d'élasticité le plus important parmi les faciès testés ( $E_{dyn}=36$  GPa), contre par exemple 16,8 GPa pour le faciès fer de lance. Celui-ci se compose de minéraux avec des macles de fer de lance imbriqués et présente une porosité totale importante ( $N_t = 11$  %) entre ces imbrications et sans doute sous-estimée compte tenu de la méthode de mesure.

Les gypses matriciels et saccharoïdes sont d'aspect granulaire avec des porosités hétérogènes selon le banc analysé (de 3 à 12%). Cette hétérogénéité est due aux conditions lagunaires de formation du gypse. Il est utilisé dans ce travail de thèse des échantillons provenant d'une carrière de région parisienne exploitant les 1<sup>ères</sup> et 2<sup>èmes</sup> masses du gypse priabonien. Des échantillons avec une porosité de l'ordre de 10% sont utilisés. Le gypse matriciel présente une granulométrie fine (de l'ordre du micromètre) avec une porosité bimodale de faible dimension (0.1 et 0.7 $\mu$ m), alors que le gypse saccharoïde présente quant à lui une porosité unimodale

## CONCLUSION ET PERSPECTIVES

avec un diamètre entre 10 et 20  $\mu\text{m}$ . Leurs modules élastiques sont similaires, soit environ 20 GPa.

Le faciès saccharoïde avec des interlits d'argiles et d'oxydes de fer venant du Sud Est de la France est proche du gypse saccharoïde « pur » parisien avec une porosité équivalente et une structure assez proche, les inter-stratifications générant une structure bimodale avec un diamètre de pore de 20  $\mu\text{m}$  et une macroporosité autour de 150  $\mu\text{m}$ . Enfin, un gypse de la région de Toulon a permis de prendre en compte les effets d'un contexte orogénique sur les propriétés du gypse. Ce contexte géologique entraîne la migration des masses du gypse en lien avec leur plasticité et conduit à la formation de nappe de charriage et de diapir. Ce gypse est donc fortement compacté, ce qui entraîne une réduction de sa porosité et l'apparition de plissement. Sa porosité atteint seulement 3,5% et est non structurée. Elle se localise dans des interlits d'argiles et de minéraux accessoires, ce qui limite les écoulements dans ce faciès.

Au final, la caractérisation des faciès a conduit à l'élaboration d'une classification (Figure 205) du gypse à partir de leur granulométrie et de leur aspect (massif, granulaire). L'ensemble de ces résultats fait l'objet d'un article (soumis à l'heure actuelle). La prise en compte de la porosité pour chaque faciès conduit à donner une estimation de leur sensibilité à l'apparition de chemins préférentiels (aussi appelés digitations). Le volume de pore et surtout le diamètre d'accès sont des éléments permettant de définir si ces conduits apparaîtront rapidement lors d'un essai de percolation. Des gypses saccharoïdes avec un diamètre de 10  $\mu\text{m}$  n'ont ainsi pas développé de chemins préférentiels avec une porosité totale ( $N_t$ ) inférieure à 5%. Ce même faciès avec ce diamètre a développé des chemins préférentiels au bout de 1 mois de percolation, mais avec une porosité de 10%. La présence d'une macroporosité développée, comme c'est le cas pour le gypse saccharoïde à interlits, conduit à un développement encore plus précoce des chemins préférentiels.

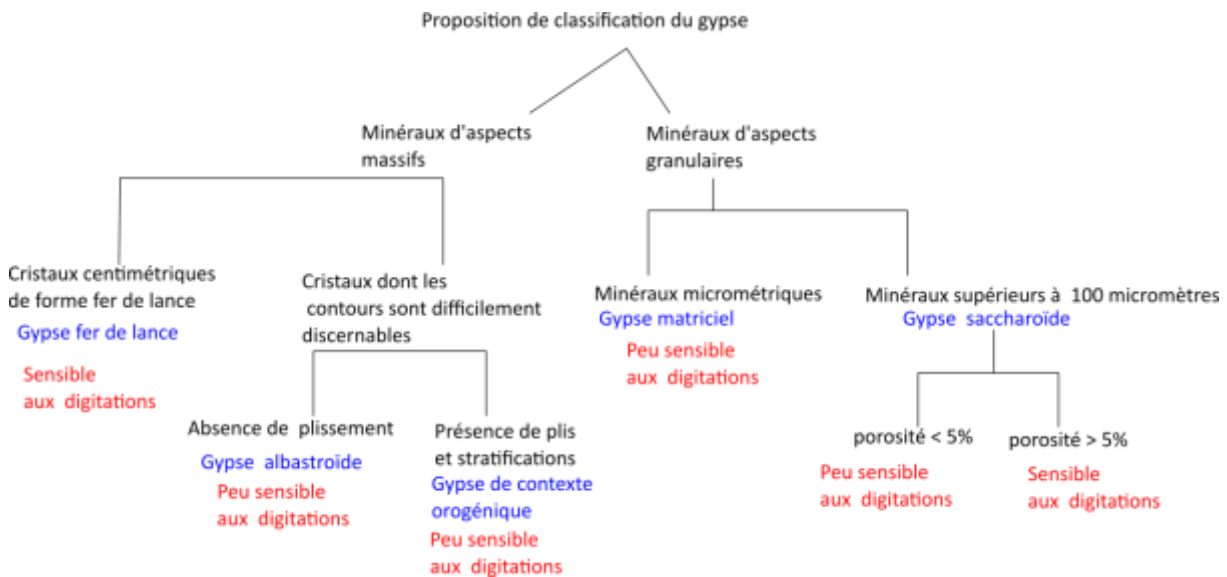


Figure 205 Proposition de classification des différents faciès du gypse et de leur sensibilité à l'apparition de chemins préférentiels.

L'intérêt était ici de décrire différents types de structures gypseuses et d'obtenir des valeurs expérimentales cohérentes entre elles (relation entre porosité et module élastique...) pour la réalisation de notre ensemble d'équations et nos modèles numériques (voir conclusion du chapitre 3). Elle a été établie à partir des résultats de cette thèse qui visaient à obtenir des paramètres de modélisation et non une classification, ce qui en limite le champ. Elle repose ainsi principalement sur la granulométrie et la porosité.

## CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Compte tenu de l'existence d'une porosité structurée dans la plupart des gypses observés, la présence d'écoulement interne à la roche devient possible, ce qui amène la formation d'un gradient d'altération. Cette considération est assez nouvelle et rarement envisagée dans le cas des roches gypseuses que l'on décrit comme des roches solubles via leur surface.

Aussi des essais de percolation d'une durée de 1 semaine, 2 semaines, 1 mois et 2 mois ont permis de mettre en évidence les profils de dissolution sur les 3 faciès retenus pour cette étude, à savoir le gypse matriciel et les faciès saccharoïdes. L'essai de percolation avec de l'eau pure (fortement agressive vis-à-vis du matériau) a permis de mettre en place un gradient de dégradation au niveau de la porosité qui devra être confirmé en conditions environnementales *in situ*. L'ensemble de ces résultats fait l'objet d'un second article en cours de rédaction.

**Le gypse matriciel n'a pas présenté d'évolution sur le mode des chemins préférentiels** du fait de sa structure poreuse (nanoporale) contrairement au gypse saccharoïde. Cette observation importante a permis de montrer le rôle majeur de la taille et quantité de pores dans le matériau quant à l'initiation de chemins préférentiels (la présence d'hétérogénéités est un second facteur à prendre en compte). La porosité du gypse matriciel avec des dimensions faibles a conduit à une dissolution principalement via les interfaces entre grains. Un autre point important observé lors de ces essais est le temps d'induction de la dégradation relativement lent. La porosité n'a commencé à évoluer de manière mesurable qu'après un mois de percolation, n'entraînant qu'une faible modification de la porosité totale (+1% de  $N_t$ ) malgré la présence d'eau pure et des conditions hydrodynamiques (0,3 bar). Cette évolution se traduit par l'élargissement des pores de 0,7 à 8  $\mu\text{m}$ , ce qui conduit à une réduction de la porosité piégée en faveur d'une porosité accessible. Cette évolution affecte au bout de 2 mois toute la hauteur des éprouvettes testées, signe de la mise en place d'un gradient d'altération et de sa progression. Cette faible évolution de la porosité entraîne une réduction du module d'élasticité d'environ 20% après 2 semaines de percolation, réduction peu évolutive au cours de la percolation jusqu'à 2 mois malgré les modifications microstructurales qui se poursuivent.

**Les gypses saccharoïdes ont quant à eux évolué sous percolation avec l'apparition de chemins préférentiels.** Ces conduits apparaissent après 1 mois de percolation pour le faciès « pur » et dès une semaine de percolation pour le faciès gypseux à interlits. Dans le gypse saccharoïde pur, la porosité évolue de manière similaire à celle du faciès matriciel avec des diamètres passant de 10 à 20  $\mu\text{m}$  et une faible augmentation du volume de l'ordre de 2%. Ce qui entraîne le développement de la porosité accessible ( $N_{48}$ ) au détriment de la porosité piégée ( $N_p$ ). La présence de macropores autour de 150 $\mu\text{m}$  au niveau des interlits argilo ferrugineux dans le gypse saccharoïde à interlits, explique dans ce cas l'apparition rapide des conduits préférentiels qui canalisent l'essentiel du flux hydraulique et accélère l'apparition des chemins préférentiels. Avant cette initiation, le diamètre des pores progresse sur la hauteur des éprouvettes avec l'avancement de la percolation (début de gradient) puis stoppe son évolution lors de l'apparition des chemins préférentiels qui canalise le flux d'eau. Le diamètre de 20  $\mu\text{m}$  apparaît donc comme une limite avant que l'écoulement ne devienne suffisamment rapide dans les pores pour que la dissolution initie un chemin référentiel rapidement. La prolongation de l'essai de percolation au-delà de 2 mois pour le gypse matriciel jusqu'à l'apparition d'un diamètre de pore supérieur à 20  $\mu\text{m}$  (actuellement élargissement à seulement 8  $\mu\text{m}$ ) pourrait conforter l'hypothèse de l'apparition de chemin préférentiel à partir de cette taille de pore. Le passage au cours des 2 mois de percolation de 0,7 à 8  $\mu\text{m}$  de diamètre laisse supposer qu'une période de 6 à 8 mois serait nécessaire pour atteindre les 20  $\mu\text{m}$ .

## CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Une fois les chemins préférentiels initiés dans les gypses saccharoïdes, ils développent des vides de l'ordre de 2 à 5% du volume pour l'ensemble des éprouvettes avec une forte variabilité selon les éprouvettes, ce qui rend extrêmement complexe les interprétations et la généralisation des comportements. Ce comportement tient à la géométrie des chemins préférentiels propre à chaque éprouvette et à leur évolution qui diffère en fonction de possibles obstructions ou non des pores par le départ de particules (gypseuses ou de minéraux secondaires), ou par la vitesse à laquelle l'élargissement des pores se produit selon les hétérogénéités en termes de minéralogie ou de microstructure.

Outre la mise en évidence de chemin préférentiel, le suivi des quantités de matières dissoutes en sortie du banc de percolation, à partir de la conductivité et du volume de percolat récupéré, permet de définir le débit limite, à partir duquel la dissolution n'est pas uniquement contrôlée par ce débit. En effet, tant que le fluide a une durée de résidence dans l'éprouvette suffisamment longue pour atteindre la saturation en gypse dissous, le débit contrôle les quantités de gypse dissous. Le taux de récession est dépendant du débit si ce dernier est inférieur à  $3.10^{-5}$  L/sec. Pour des débits plus importants, les valeurs deviennent plus hétérogènes avec l'apparition d'une sous-saturation de l'eau de percolation.

En ce qui concerne le suivi de la dégradation mécanique au cours de la percolation, les méthodes non destructives ont montré des limites notamment avec l'apparition des chemins préférentiels. On observe des réductions du module élastique de l'ordre de 20 à 30% via la vitesse du son et 60 à 70% via la fréquence de résonance. Le renouvellement des essais de percolation avec l'utilisation d'essais mécaniques destructifs, de type essai de compression (ce qui suggère un très nombre d'éprouvette pour lisser les impacts de possibles hétérogénéités entre éprouvettes) ou des essais de macro-indentation, permettrait d'améliorer les paramètres introduits dans le modèle numérique développé dans ce travail de thèse.

Le dernier volet expérimental de ce travail a porté sur l'étude des cinétiques de dissolution du gypse. Ces cinétiques sont bien décrites dans la littérature mais comme pour les propriétés poromécaniques, peu d'informations sont disponibles sur le faciès de gypse testé et le possible effet de la géochimie ou de la morphologie des grains de gypse sur sa dissolution en masse. Cette étude a permis de tester différents faciès de gypse avec des formules minéralogiques globalement similaire (sans prendre en compte les impuretés intra-cristallines) mais des textures variables. Avec des densités ou types de site à la surface des cristaux de gypse qui varient selon les faciès (selon les clivages dominants), valider le non impact de ce paramètre sur les propriétés cinétiques de dissolution était une étape importante. En effet, ces sites avec des énergies de dissociation variables (du point de vue thermodynamique) seraient capables d'initier la dissolution de manière différente selon les faciès. Pour cela, 5 des faciès caractérisés ont été broyés et leur cinétique de dissolution a été étudiée à 25, 30 et 35°C pour 2 classes granulométriques. Des différences de cinétique de dissolution apparaissent de manière limitée entre faciès avec des valeurs allant de 1 à  $9.10^{-2}$  mol.m<sup>-2</sup>.sec<sup>-1</sup> de gypse dissous à 25°C.

Des essais de dissolution sur des disques et des pavés de gypse avec les faciès matriciels et saccharoïdes ont permis en complément d'observer le rôle des hétérogénéités minéralogiques ou morphologiques sur l'initiation et le déroulement de la dissolution.. La vitesse de rotation du fluide au contact des surfaces gypseuses (traduite en termes de vitesse de ruissellement) affecte l'évolution des surfaces via une dissolution préférentielle des cristaux de gypse millimétriques dans le faciès matriciel par rapport aux cristaux nanométriques de la phase de liaison. Par contre, les gypses saccharoïdes se dissolvent de manière homogène alors que le gypse à interlits présente une érosion de surface par départ (lessivage) des particules d'argiles et d'oxydes. Ce processus doit par conséquent contribuer à l'apparition des chemins préférentiels de manière précoce dans ce type de faciès.

## CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Sur le plan de la dissolution, la surface de réaction est considérée constante au cours de l'essai, ce qui entraîne un biais lors de la détermination des caractéristiques cinétiques. Une idée pour pouvoir approximer la surface en cours d'essai serait de définir une géométrie moyenne à partir d'images acquises au MEB ou au microscope à profondeur de champs et ensuite de faire réduire cette surface théorique avec l'augmentation de la concentration en solution en cours d'essai. Une tentative d'arrêt de l'essai et de mesure BET sur des grains de gypse s'est avérée difficilement exploitable pour établir ce type de relation, notamment pour déterminer de manière précise l'avancement de la réaction lors de l'interruption de la dissolution.

La seconde partie du travail de thèse a porté sur une approche numérique et le développement d'un modèle HMC. Ainsi, l'ensemble du programme expérimental réalisé a permis d'obtenir des valeurs d'entrées pour le modèle développé, soit la porosité totale, le diamètre moyen des pores, la masse volumique du matériau, le taux de dissolution à vitesse nulle  $\tau_0$ , ainsi que l'effet de la vitesse d'écoulement sur ce taux de dissolution.

Initialement les calculs envisagés devaient être réalisés à partir d'un couplage entre logiciel géochimique (phreeqC, thoughreact...) et d'un logiciel basé sur les éléments finis pour la partie hydromécanique. Une approche plus simple a consisté en un seul code de modélisation, à savoir le code par éléments finis Disroc. Ce logiciel dispose d'un module de chimie simplifiée qui permet l'intégration d'une concentration dans le maillage et de suivre son évolution au cours du temps et du transport des espèces.

Le modèle développé dans ce travail de thèse repose sur 2 postulats, à savoir que le nombre de pores dans le matériau est fini et que la géométrie de ces pores est sphérique. Quoique cette géométrie soit peu réaliste, elle a été retenue par simplification en utilisant un diamètre de pore moyen. Les équations introduites dans le calcul reposent sur le principe de l'augmentation de la porosité avec la libération d'ions calcium ( $\text{Ca}^{2+}$ ) contenu dans le gypse lors de la dissolution (lié à une concentration). La surface disponible pour initier la dissolution est calculée à partir de la surface de l'ensemble des pores et de leurs diamètres. Le diamètre de pore détermine le nombre de pore en fonction de la porosité et est basé sur des résultats expérimentaux.

Ensuite la dissolution s'initie lorsque la solution au contact de la phase solide est sous saturée, ce qui entraîne une dissociation et la libération de calcium (donc une augmentation de la concentration). À partir du volume molaire du gypse soit  $7.10^{-5} \text{ m}^3/\text{mol}$ , le volume de vide (porosité) supplémentaire créé par dissolution est calculé à chaque itération à partir de la quantité d'éléments mis en solution. Cette masse est calculée à partir d'un taux de dissolution expérimental pour une vitesse du fluide en écoulement nulle soit  $2.10^{-6} \text{ mol.m}^{-2}.\text{sec}^{-1}$ ). Ce taux de dissolution est ensuite adapté à la vitesse d'écoulement dans le modèle numérique à partir de l'effet de la vitesse d'écoulement du fluide sur la cinétique de dissolution soit  $4.10^{-6} \text{ mol. m}^{-2}.\text{sec}^{-1}$ . Cet effet a également été déterminé expérimentalement. L'impact de la vitesse est calculé à chaque itération en fonction de l'augmentation de la porosité et de son effet sur la perméabilité.

Cette augmentation du volume de vide se répercute alors sur le diamètre moyen des pores (associé à la forme sphérique du pore) et modifie la surface de réaction pour chaque pas de calcul. L'augmentation de la porosité affecte la perméabilité suivant la relation de Kozeny-Carman qui adapte la vitesse de l'écoulement à chaque itération dans la simulation. D'autres lois que Kozeny-Carman comme les lois de Fair-Hatch (Bear, 1979; Beckingham, 2017) ou le modèle de Verma and Pruess (1988) pourraient être également testés pour comparaison dans la suite de ce travail. De même, la géométrie du diamètre de pore (carrée, cylindrique...) pourra être investiguée dans une version 2 du modèle développé, de même que l'introduction

## CONCLUSION ET PERSPECTIVES

de diverses classes de pores avec des tailles variables permettant d'approcher une porosité plus réaliste (avec des rétrécissements/élargissements favorisant le transport des produits de dissolution et facilitant la propagation de la dissolution à l'intérieur du matériau gypseux).

Quoique le système modélisé soit issu d'une simplification, les équations implémentées dans le logiciel de modélisation par éléments finis Disroc ont permis de reproduire de manière satisfaisante l'évolution d'une éprouvette de gypse soumise à un essai de dégradation par percolation. Ce résultat permet de valider l'approche développée, ce qui remet en question la nécessité de développer des modèles plus sophistiqués prenant en compte une chimie complexe du fluide au contact du gypse (interactions en solution) ou une chimie complexe des gypses (avec des substitutions intra-cristallines ou des variations minéralogiques).

La dissolution dont les effets sont simulés numériquement reste toutefois uniforme alors que les tests expérimentaux ont conduit à la mise en place de chemins préférentiels. Ce phénomène lié aux hétérogénéités de la porosité et de la structure (variation de la taille de pores...) n'a pas été reproduit numériquement. L'introduction d'une variation des valeurs initiales de porosité en termes de taille et de quantité (d'un point à un autre du maillage) devrait permettre d'initier les phénomènes hétérogènes de chemins préférentiels. Ces variations devront être établies à partir des courbes d'intrusion de porosimétrie mercure qui caractérisent les différentes classes de pores et leur volume respectif. L'application de l'approche développée sur d'autres roches (notamment des calcaires) avec des cinétiques de dissolution différentes permettra à terme de consolider le modèle numérique.

Concernant l'effet de la dissolution sur la dégradation mécanique des matériaux gypseux, il est pris en compte à partir d'une loi de Mohr-Coulomb élasto-plastique définie par six paramètres (module élastique, coefficient de Poisson, angle de frottement, cohésion, angle de dilation et résistance en traction). Afin de ne pas allonger les temps de calcul, l'évolution de la résistance mécanique du gypse est gouvernée à partir d'un seul paramètre soit la cohésion ( $c$ ). Ce paramètre est borné par 2 valeurs limites issues de la littérature soit 0,2 et 8 MPa. Une fonction reliant la cohésion  $c$  à la porosité  $N_t$  permet de faire évoluer la cohésion avec la dissolution du gypse.

Une fois les équations intégrées dans le code de calcul, deux applications ont été réalisées pour démontrer la capacité du modèle numérique à prédire les évolutions des propriétés d'un massif gypseux. Un premier cas de simulation visant à reproduire la dissolution d'une éprouvette de gypse lors d'un essai de percolation similaire à celui effectué dans le programme expérimental a permis de valider l'approche développée. Le résultat apparaît cohérent avec une dissolution préférentiellement de surface, de l'ordre de quelques millimètres (correspondant à l'expérimentale) et le développement d'un gradient de quelques millimètres également selon l'axe de percolation du fluide de type eau pure. La modélisation n'a en revanche pas permis de mettre en place une dissolution préférentielle ou d'initier le développement de conduit hétérogène comme mentionné précédemment compte tenu de l'absence d'hétérogénéités du modèle numérique. Les différents paramètres (diamètre de pore, perméabilité...) suivent une évolution en accord avec les résultats expérimentaux, soit un doublement des valeurs initiales.

Une seconde simulation a été réalisée à l'échelle du massif avec cette fois un triple objectif :

- vérifier qu'à cette échelle les équations retenues permettent toujours de modéliser de manière satisfaisante la dissolution d'une masse de gypse,
- visualiser si la dissolution s'initie de manière correcte au travers d'une interface entre 2 roches (dans ce cas gypse-calcaire),
- enfin, visualiser l'impact de la dissolution d'une couche de gypse sur une structure géotechnique, symbolisée dans notre modèle par une dalle.

## CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Le premier objectif soit une adaptation de la dissolution à l'échelle d'un massif fonctionne avec le développement de la porosité du massif lors de l'arrivée d'une perturbation chimique. La porosité évolue de manière similaire au cas de l'éprouvette avec un doublement de la perméabilité et du diamètre de pore. La réduction de la cohésion est bien corrélée avec la porosité. Le taux de récession estimé est de 0,24 mm/an, ce qui est du même ordre de grandeur que le taux de récession donné par (Águila et al., 2022) dans leurs simulations.

Le tassement de la couche symbolisant un « bâti » s'initie une fois que la dissolution est active au sein de la couche de gypse. Ce tassement est à l'image de l'évolution de la porosité avec une évolution rapide (50% du déplacement sur 300 000 jours) puis un ralentissement avec une évolution lente et continue avec l'avancement de la dégradation. Ce tassement reste néanmoins très faible (moins de 1 mm) ce qui demande une adaptation de la relation entre la porosité et les paramètres mécaniques. D'autres paramètres de la loi de Mohr-Coulomb, comme le module élastique ou l'angle de frottement devront être introduits.

Enfin, si un modèle HMC opérationnel a été établi dans le cadre de ce travail de thèse, l'aspect thermique souvent couplé dans les approches numériques a été abordé au niveau expérimental mais non introduit dans l'approche numérique. Les variations de température et leurs effets étant négligeables dans les cas modélisés, le paramètre température n'a pas été considéré. Des applications dans le cas du stockage de gaz ou de déchets radioactifs (qui impliquent des variations thermiques non négligeables) nécessiteraient l'ajout dans le modèle du paramètre thermique. La température étant déjà prise en compte pour les aspects hydromécaniques dans Disroc, il resterait à implémenter l'effet de la température sur la dissolution via l'énergie d'activation ( $E_a$ ) qui a été mesurée via les tests de cinétique de dissolution sur poudre.

En conclusion, ce travail de thèse a permis de mieux comprendre la variabilité des propriétés poromécaniques du gypse et de définir une classification plus fine des matériaux gypseux associé à leur comportement lors de la dissolution. Les essais de percolation ont permis de mettre en évidence la présence d'écoulement au sein des matrices gypseuses, du développement d'un gradient d'altération dans le matériau et la variabilité des constantes de dissolution du gypse selon les faciès et leur sensibilité aux conditions environnementales (vitesse d'écoulement du fluide, température). L'ensemble des équations développées dans ce travail de thèse et introduit dans le code de calcul aux éléments finis Disroc apparaît fonctionnel, notamment à l'échelle de l'éprouvette. En effet, la simulation numérique reproduit avec les mêmes ordres de grandeur les effets de la dissolution des échantillons soumis expérimentalement à la percolation. L'intérêt de l'approche développée est d'utiliser les paramètres micro/macro expérimentaux mesurés sur les différents faciès gypseux testés (alors que la littérature ne donne jamais que des informations partielles et incomplètes). La dissolution reste dominée par une régression de surface, et l'établissement d'un gradient ne se produit qu'une fois la zone de contact entre le gypse et le calcaire déjà bien attaquée. Il est ainsi développé à partir de l'évolution de la porosité un système HMC opérationnel. Les équations développées quoique perfectibles constituent donc un premier pas pour prédire l'évolution des propriétés des massifs gypseux soumis au processus de dissolution. Ce type de calcul peut trouver son application dans la gestion de l'aléa cavité (dissolution du gypse, développement de karst...) mais aussi pour estimer l'évolution des contraintes pour le dimensionnement d'un ouvrage.



## **BIBLIOGRAPHIE**



## BIBLIOGRAPHIE

Abd-Sharifabadi, H.: Structure visco-plastique en matériau de Norton-Hoff “Application en géophysique et en analyse limite,” Ecole National des Ponts et Chaussées, Paris, 179 pp., 1981.

Afanasyev, A. and Grechko, S.: Analytical expression for the skin factor of the salt deposition zone around a CO<sub>2</sub> injection well: Extension to the case of ternary miscible displacement, *Geoenergy Science and Engineering*, 228, 212036, <https://doi.org/10.1016/j.geoen.2023.212036>, 2023.

AFNOR: NF B10-513: Produits de carrières - Pierres naturelles - Essai de gel, 1991.

AFNOR: NF EN 1925 : Natural stone test methods. Determination of water absorption coefficient by capillarity., 1999.

AFNOR: NF EN 14146 - méthodes d'essai pour pierres naturelles - Détermination du module d'élasticité dynamique (par mesure de la fréquence de résonance fondamentale), 2004.

AFNOR: NF EN 14579 : Méthodes d'essai pour pierres naturelles - Détermination de la vitesse de propagation du son, 2005.

AFNOR: NF EN 1936 : méthodes d'essai des pierres naturelles - Détermination des masses volumiques réelle et apparente et des porosités ouverte et totale, 2007.

AFNOR: ISO 15901 : Evaluation de la distribution de taille des pores et la porosité des matériaux solides par porosimétrie à mercure et l'adsorption des gaz, 2016.

Águila, J. F., Samper, J., Buil, B., Gómez, P., and Montenegro, L.: Reactive Transport Model of Gypsum Karstification in Physically and Chemically Heterogeneous Fractured Media, *Energies*, 15, <https://doi.org/10.3390/en15030761>, 2022.

Alam, M. M., Borre, M. K., Fabricius, I. L., Hedegaard, K., Røgen, B., Hossain, Z., and Krogsbøll, A. S.: Biot's coefficient as an indicator of strength and porosity reduction: Calcareous sediments from Kerguelen Plateau, *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 70, 282–297, <https://doi.org/10.1016/j.petrol.2009.11.021>, 2010.

Al-Droubi, A., Jean-Lou, G., Bertrand, F., and Yves, T.: Calcul des équilibres dans le système CaCO<sub>3</sub> - H<sub>2</sub>O - CO<sub>2</sub>. Rappel des conditions de dissolution et de précipitation de la calcite, *Sciences Géologiques. Bulletin*, 31, 195–202, 1978.

Alewell, C., Egli, M., and Meusburger, K.: An attempt to estimate tolerable soil erosion rates by matching soil formation with denudation in Alpine grasslands, *Journal of Soils and Sediments*, 15, 1383–1399, <https://doi.org/10.1007/s11368-014-0920-6>, 2015.

Al-Khulaifi, Y., Lin, Q., Blunt, M. J., and Bijeljic, B.: Reaction Rates in Chemically Heterogeneous Rock: Coupled Impact of Structure and Flow Properties Studied by X-ray Microtomography, *Environ. Sci. Technol.*, 51, 4108–4116, <https://doi.org/10.1021/acs.est.6b06224>, 2017.

André, L., Audigane, P., Azaroual, M., and Menjzoz, A.: Numerical modeling of fluid–rock chemical interactions at the supercritical CO<sub>2</sub>–liquid interface during CO<sub>2</sub> injection into a carbonate reservoir, the Dogger aquifer (Paris Basin, France), *Energy Conversion and Management*, 48, 1782–1797, <https://doi.org/10.1016/j.enconman.2007.01.006>, 2007.

## BIBLIOGRAPHIE

Appelo, C. A. J. and Postma, D.: *Geochemistry, groundwater and pollution*, 2ème édition., Balkema Publishers, Rotterdam, 683 pp., 1993.

Aris, R. and Taylor, G. I.: On the dispersion of a solute in a fluid flowing through a tube, *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences*, 235, 67–77, <https://doi.org/10.1098/rspa.1956.0065>, 1956.

Aubouin, J.: *Cours de Géodynamique interne*, 1960.

Auvray, C.: *Vieillissement et comportement rhéologique du gypse*, mémoire de thèse, Institut national Polytechnique de Lorraine, Nancy, 279 pp., 2003.

Auvray, C., Homand, F., and Sorgi, C.: The aging of gypsum in underground mines, *Engineering Geology*, 74, 183–196, 2004.

Bartel, E. M., Neubauer, F., Heberer, B., and Genser, J.: A low-temperature ductile shear zone: The gypsum-dominated western extension of the brittle Fella-Sava Fault, Southern Alps, *Journal of Structural Geology*, 69, 18–31, <https://doi.org/10.1016/j.jsg.2014.09.016>, 2014.

Barton, A. F. M. and Wilde, N. M.: Dissolution rates of polycrystalline samples of gypsum and orthorhombic forms of calcium sulphate by a rotating disc method, *Trans. Faraday Soc.*, 67, 3590–3597, <https://doi.org/10.1039/TF9716703590>, 1971.

Bear, J.: *Hydraulics of groundwater*, Mc Graw Hill, New York, 569 pp., 1979.

Beck, K.: *Étude des propriétés hydriques et des mécanismes d'altération de pierres calcaires à forte porosité*, thèse de doctorat, Université d'Orléans, Orléans, 244 pp., 2006.

Beckingham, L. E.: Evaluation of Macroscopic Porosity-Permeability Relationships in Heterogeneous Mineral Dissolution and Precipitation Scenarios, *Water Resources Research*, 53, 10217–10230, <https://doi.org/10.1002/2017WR021306>, 2017.

Bell, F. G.: A survey of the engineering properties of some anhydrite and gypsum from the north and midlands of England, *Engineering Geology*, 38, 1–23, [https://doi.org/10.1016/0013-7952\(94\)90021-3](https://doi.org/10.1016/0013-7952(94)90021-3), 1994.

Bemer, E. and Lombard, J. M.: From Injectivity to Integrity Studies of CO<sub>2</sub> Geological Storage, *Oil & Gas Science and Technology*, 65, 445–459, <https://doi.org/10.2516/ogst/2009028>, 2009.

Bemer, E. and Lombard, J.-M.: An Experimental Investigation of the Evolution of Rock Poromechanical Properties Associated with Chemical Alteration Processes, 195–202, <https://doi.org/10.1002/9781118623565.ch18>, 2013.

Bemer, E., Vincké, O., and Longuemare, P.: Geomechanical Log Deduced from Porosity and Mineralogical Content, *Oil & Gas Science and Technology - Rev. IFP*, 59, 405–426, <https://doi.org/10.2516/ogst:2004028>, 2004.

Bemer, E., Nguyen, M. T., Dautriat, J., Adelinet, M., Fleury, M., and Youssef, S.: Impact of chemical alteration on the poromechanical properties of carbonate rocks, *Geophysical Prospecting*, 64, 810–827, <https://doi.org/10.1111/1365-2478.12387>, 2016.

## BIBLIOGRAPHIE

- Bénévent, E. and Maury, E.: Les grandes pluies de l'automne 1926 et la catastrophe de Roquebillière (Alpes-maritimes), *Revue De Geographie Alpine*, 15, 151–157, 1927.
- Bérest, P., Gharbi, H., Brouard, B., Brückner, D., DeVries, K., Hévin, G., Hofer, G., Spiers, C., and Urai, J.: Very Slow Creep Tests on Salt Samples, *Rock Mechanics and Rock Engineering*, 52, 2917–2934, <https://doi.org/10.1007/s00603-019-01778-9>, 2019.
- Bernini, D., Audétat, A., Dolejš, D., and Keppler, H.: Zircon solubility in aqueous fluids at high temperatures and pressures, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 119, 178–187, <https://doi.org/10.1016/j.gca.2013.05.018>, 2013.
- Bertolus, I., Batilliot, L., Batista, D., Batteux, R., Séjourné, D., Valette, L., Serratrice, J.-F., and Arnaud, S.: Opération de recherche PRECAS (RPR2S12004) Sujet n°5 – Analyse de la stabilité des cavités – comportement, mécanismes de vieillissement dissolution., CEREMA, Aix en Provence, 2017.
- Bigot, J.-Y.: Le karst du gypse, *Karstologia mémoires*, 86–87, 2010.
- Biot, M. A.: General Theory of Three-Dimensional Consolidation, *Journal of Applied Physics*, 12, 155–164, <https://doi.org/10.1063/1.1712886>, 1941.
- Biot, M. A.: Theory of Elasticity and Consolidation for a Porous Anisotropic Solid, *Journal of Applied Physics*, 26, 182–185, <https://doi.org/10.1063/1.1721956>, 1955.
- Biot, M. A.: Theory of finite deformations of porous solids, *Indiana University Mathematics Journal*, 21, 597–620, 1972.
- Bishop, A. W.: The Principle of Effective Stress, *Teknisk Ukeblad*, 39, 859–863, 1959.
- Blanc, Ph., Bourbon, X., Lassin, A., and Gaucher, E. C.: Chemical model for cement-based materials: Temperature dependence of thermodynamic functions for nanocrystalline and crystalline C–S–H phases, *Cement and Concrete Research*, 40, 851–866, <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2009.12.004>, 2010.
- Blount, C. W. and Dickson, F. W.: Gypsum-Anhydrite Equilibria in Systems CaSO<sub>4</sub>-H<sub>2</sub>O and CaCO<sub>4</sub>-NaCl-H<sub>2</sub>O, *American Mineralogist*, 58, 323–331, 1973.
- Bock, E.: ON THE SOLUBILITY OF ANHYDROUS CALCIUM SULPHATE AND OF GYPSUM IN CONCENTRATED SOLUTIONS OF SODIUM CHLORIDE AT 25 °C, 30 °C, 40 °C, AND 50 °C, *Can. J. Chem.*, 39, 1746–1751, <https://doi.org/10.1139/v61-228>, 1961.
- Boidy, E.: Modélisation numérique du comportement différé des cavités souterraines, Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier - Grenoble I, Grenoble, 321 pp., 2002.
- Bordet, C. and Deletie, P.: La stabilité des versants d'une grande retenue des alpes françaises. Phénomènes géologiques. Surveillance des évolutions, *Bulletin of the International Association of Engineering Geology - Bulletin de l'Association Internationale de Géologie de l'Ingénieur*, 20, 168–172, <https://doi.org/10.1007/BF02591273>, 1979.
- Bosbach, D. and Rammensee, W.: In situ investigation of growth and dissolution on the (001) surface of gypsum by scanning force microscopy, *Geochimica et cosmochimica acta*, 58, 843–849, 1994.

## BIBLIOGRAPHIE

- Bosch, B., Marcé, A., and Megnien, C.: Observations sur la zonalité de la composition isotopique du soufre des Gypses de Ludien du Bassin de Paris, signification géochimique, *Bulletin d'information des géologues du bassin de Paris*, 31–34, 1974.
- Bouchelaghem, F.: A numerical and analytical study on calcite dissolution and gypsum precipitation, *Applied Mathematical Modelling*, 34, 467–480, <https://doi.org/10.1016/j.apm.2009.06.004>, 2010.
- Bouissonnié, A., Daval, D., Marinoni, M., and eckerer, philippe: From mixed flow reactor to column experiments and modeling: Upscaling of calcite dissolution rate, *Chemical Geology*, 63–75, 2018.
- Boulvain, F.: *Éléments de Sédimentologie et de Pétrologie sédimentaire; Cours du département de géologie*, 2011.
- Bousquie, P.: *Texture et porosité de roches calcaires;*, Université Pierre et Marie Curie, Paris, 190 pp., 1979.
- Brandse, W. P., van Rosmalen, G. M., and Brouwer, G.: The influence of sodium chloride on the crystallization rate of gypsum, *Journal of Inorganic and Nuclear Chemistry*, 39, 2007–2010, [https://doi.org/10.1016/0022-1902\(77\)80534-4](https://doi.org/10.1016/0022-1902(77)80534-4), 1977.
- Brenner, H. and Stewartson, K.: Dispersion resulting from flow through spatially periodic porous media, *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences*, 297, 81–133, <https://doi.org/10.1098/rsta.1980.0205>, 1997.
- Brunauer, S., Emmett, P. H., and Teller, E.: ADSORPTION OF GASES IN MULTIMOLECULAR LAYERS, *Journal of the American Chemical Society*, 60, 309–319, 1938.
- Brunauer, S., Deming, L. S., Deming, W. E., and Teller, E.: On a Theory of the van der Waals Adsorption of Gases, *Journal of the American Chemical Society*, 62, 1723–1732, 1940.
- Brunet, P.: *Détermination expérimentale des constantes de réaction influençant la dissolution d'une roche carbonatée à différentes températures*, Ecole polytechnique de Montréal, Montréal, 2017.
- Bruno, F. and Martillier, F.: Test Of High-Resolution Seismic Reflection And Other Geophysical Techniques On The Boup Landslide In The Swiss Alps, *Surveys in Geophysics*, 21, 335–350, <https://doi.org/10.1023/A:1006736824075>, 2000.
- Bustamante, R., Vázquez, P., Cantarell, M., and Monjo, J.: Adapted ageing tests for the evaluation of alabaster used in the restoration of Bishop's Palace of Tarazona, *Materiales de Construcción*, 70, 219–231, <https://doi.org/10.3989/mc.2020.08619>, 2020.
- Cailleux, J.-B., Lemaire, J.-L., and Toulemont, Marcel: *Carrière souterraine de gypse. Etude de stabilité - diagnostic - surveillance - confortation*, Laboratoire Centrale des Ponts et Chaussées, Paris, 1989.
- Caselle, C., Bonetto, S., Colombero, C., and Comina, C.: Mechanical properties of microcrystalline branching selenite gypsum samples and influence of constituting factors,

## BIBLIOGRAPHIE

Journal of Rock Mechanics and Geotechnical Engineering, 11, 228–241, <https://doi.org/10.1016/j.jrmge.2018.09.003>, 2019.

Caselle, C., Baud, P., Kushnir, A. R. L., Reuschlé, T., and Bonetto, S. M. R.: Influence of water on deformation and failure of gypsum rock, *Journal of Structural Geology*, 163, 104722, <https://doi.org/10.1016/j.jsg.2022.104722>, 2022.

Casey, W. H.: Heterogeneous kinetics and diffusion boundary layers: The example of reaction in a fracture, *Journal of Geophysical Research*, 92, 8007–8013, 1987.

Castellanza Riccardo, Nova Roberto, and Orlandi Gianmarco: Evaluation and Remediation of an Abandoned Gypsum Mine, *Journal of Geotechnical and Geoenvironmental Engineering*, 136, 629–639, [https://doi.org/10.1061/\(ASCE\)GT.1943-5606.0000249](https://doi.org/10.1061/(ASCE)GT.1943-5606.0000249), 2010.

Caudron, M.: Etude expérimentale et numérique de l'interaction sol-structure lors de l'occurrence d'un fontis, Thèse de doctorat, INSA de Lyon, Lyon, 300 pp., 2007.

Chang, L., Konietzky, H., and Frühwirt, T.: Strength Anisotropy of Rock with Crossing Joints: Results of Physical and Numerical Modeling with Gypsum Models, *Rock Mechanics and Rock Engineering*, 52, 2293–2317, <https://doi.org/10.1007/s00603-018-1714-8>, 2019.

Chapuis, R. and Aubertin, M.: Predicting the coefficient of permeability of soils using the Kozeny-Carman equation, 2003.

Chardon, M.: La mesure de l'érosion dans le gypse /anhydrite des Alpes françaises du Nord. Méthodes et état des connaissances., *Revue De Géographie Alpine*, 2, 45–56, 1996.

Chardon, M. and Nicod, J.: Gypsum karst of France, *International Journal of Speleology*, 25, <https://doi.org/10.5038/1827-806X.25.3.13>, 1996.

Charles, N., Colin, S., Gutierrez, T., and Lefebvre, G.: Gypse et Anhydrite - Memento, BRGM, 1993.

Charles, N., Colin, S., Gutierrez, T., and Lefebvre, G.: Gypse et Anhydrite - Mémento, 2020.

Charmoille, A. and Lecomte, A.: Dissolution naturelle du gypse dans le sous-sol. Analyse et gestion des aléas mouvements de terrain de type affaissement et effondrement, INERIS., verneuil en halate, 34 pp., 2018.

Christaras, B., Auger, F., and Mosse, E.: Determination of the moduli of elasticity of rocks. Comparison of the ultrasonic velocity and mechanical resonance frequency methods with direct static methods, *Materials and Structures*, 27, 222–228, <https://doi.org/10.1007/BF02473036>, 1994.

Ciantia, M. O. and Hueckel, T.: Weathering of submerged stressed calcarenites: chemo-mechanical coupling mechanisms, *Géotechnique*, 63, 768–785, <https://doi.org/10.1680/geot.SIP13.P.024>, 2013.

Ciantia, M. O., Castellanza, R., Crosta, G. B., and Hueckel, T.: Effects of mineral suspension and dissolution on strength and compressibility of soft carbonate rocks, *Engineering Geology*, 184, 1–18, <https://doi.org/10.1016/j.enggeo.2014.10.024>, 2015.

## BIBLIOGRAPHIE

Clark, G. B.: Deformation Moduli of rocks, Fifth Pacific Area National Meeting of the Society, Denver, 1965.

Coarita-Tintaya, E.-D., Golfier, F., Grgic, D., Souley, M., and Cheng, L.: Hydromechanical Modelling of Salt Caverns Subjected to Cyclic Hydrogen Injection and Withdrawal, *SSRN Electronic Journal*, <https://doi.org/10.2139/ssrn.4326362>, 2023.

Cohen, K. M., Harper, D. A. T., and Gibbard, P. L.: ICS International Chronostratigraphic Chart 2023/06, 2023.

Colombani, J.: Measurement of the pure dissolution rate constant of a mineral in water, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 72, 5634–5640, <https://doi.org/10.1016/j.gca.2008.09.007>, 2008.

Colombani, J.: Dissolution measurement free from mass transport, 85, 61–70, <https://doi.org/10.1351/PAC-CON-12-03-07>, 2012.

Colombani, J.: measurement of the pure dissolution rate constant of a mineral in water, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 5634–5640, 2008.

Coppée, T.: Etude physico-mécanique de l'imbibition de l'eau dans les pierres de construction; Perte de résistance en fonction de la saturation, Université de Reims Champagne-Ardenne, Dimbsthal, 2018.

Courard, L. and Michel, F.: Energies libres de surface des solides et des liquides: une approche de la compréhension des phénomènes interfaciaux, 2003.

Coussy, O.: Poromechanics, John Wiley & Sons, 320 pp., 2004.

Coussy, O.: Mechanics and physics of porous solids, Wiley., John Wiley & Sons, Chichester, 281 pp., 2010.

Daccord, G., Touboul, E., and Lenormand, R.: Carbonate acidizing toward a quantitative model of the wormholing phenomenon, *Spe Production Engineering*, 4, 63–68, 1989.

Daccord, G., Liétard, O., and Lenormand, R.: Chemical dissolution of a porous medium by a reactive fluid—II. Convection vs reaction, behavior diagram, *Chemical Engineering Science*, 48, 179–186, [https://doi.org/10.1016/0009-2509\(93\)80294-Z](https://doi.org/10.1016/0009-2509(93)80294-Z), 1993.

Dai, Z., Kan, A. T., Shi, W., Zhang, N., Zhang, F., Yan, F., Bhandari, N., Zhang, Z., Liu, Y., Ruan, G., and Tomson, M. B.: Solubility Measurements and Predictions of Gypsum, Anhydrite, and Calcite Over Wide Ranges of Temperature, Pressure, and Ionic Strength with Mixed Electrolytes, *Rock Mechanics and Rock Engineering*, 50, 327–339, <https://doi.org/10.1007/s00603-016-1123-9>, 2017a.

Dai, Z., Kan, A. T., Shi, W., Zhang, N., Zhang, F., Yan, F., Bhandari, N., Zhang, Z., Liu, Y., Ruan, G., and Tomson, M. B.: Solubility Measurements and Predictions of Gypsum, Anhydrite, and Calcite Over Wide Ranges of Temperature, Pressure, and Ionic Strength with Mixed Electrolytes, *Rock Mechanics and Rock Engineering*, 50, 327–339, <https://doi.org/10.1007/s00603-016-1123-9>, 2017b.

Darcy, H.: Les fontaines publiques de la ville de Dijon, Dalmont, Paris, 110 pp., 1856.



## BIBLIOGRAPHIE

Daupley, X., Laouafa, F., Billiotte, J., and Quintard, M.: la dissolution du gypse : quantifier les phénomènes, Mines et carrières (Paris), 35–43, 2015.

Deconinck, J., Brigaud, B., and Pellenard, P.: Pétrographie et environnements sédimentaires, Dunod, Paris, 346 pp., 2016.

Delfau: Etude documentaire sur les gisements de gypse français, BRGM, Orléans, 1974.

Dellery, B. and Durozoy, G.: Etude géologique et hydrogéologique . Tunnel du Braus, Bureau de Recherches Géologiques et Minières, Marseille, 1975.

Demarco, M., Jahns, E., Rüdrieh, J., Oyhantcabal, P., and Siegesmund, S.: The impact of partial water saturation on rock strength: an experimental study on sandstone Der Einfluss einer partiellen Wassersättigung auf die mechanischen Gesteinseigenschaften: eine Fallstudie an Sandsteinen, Zeitschrift der Deutschen Gesellschaft für Geowissenschaften, 158, 869–882, <https://doi.org/10.1127/1860-1804/2007/0158-0869>, 2007.

Deocampo, D. and Jones, B.: Geochemistry of Saline Lakes, in: Treatise on Geochemistry: Second Edition, vol. 7, 437–469, <https://doi.org/10.1016/B978-0-08-095975-7.00515-5>, 2014.

Diamond, S.: Mercury porosimetry: An inappropriate method for the measurement of pore size distributions in cement-based materials, Cement and Concrete Research, 30, 1517–1525, [https://doi.org/10.1016/S0008-8846\(00\)00370-7](https://doi.org/10.1016/S0008-8846(00)00370-7), 2000.

Diederik, J. and Simunek, J., Jirka: User Manual of Multicomponent Variably-Saturated Flow and Transport Model HP1: Description, Verification, and Examples (Version 1.0), SCK-CEN, Mol, Belgium, 2005.

Direction régional de l'industrie, de la recherche et de l'environnement: Plan d'exposition aux risques liés aux carrières souterraines de gypse abandonnées. Massif de l'Hautil, Direction régional de l'industrie, de la recherche et de l'environnement, Yvelines, 1995.

Dominijanni, A. and Manassero, M.: Modelling the swelling and osmotic properties of clay soils. Part I: The phenomenological approach, International Journal of Engineering Science, 51, 32–50, <https://doi.org/10.1016/j.ijengsci.2011.11.003>, 2012a.

Dominijanni, A. and Manassero, M.: Modelling the swelling and osmotic properties of clay soils. Part II: The physical approach, International Journal of Engineering Science, 51, 51–73, <https://doi.org/10.1016/j.ijengsci.2011.11.001>, 2012b.

Dreybrodt, W. and Buhmann, D.: A mass transfer model for dissolution and precipitation of calcite from solutions in turbulent motion, Chemical Geology, 90, 107–122, [https://doi.org/10.1016/0009-2541\(91\)90037-R](https://doi.org/10.1016/0009-2541(91)90037-R), 1991.

Dreybrodt, W. and Gabrovsek, F.: Basic processes and mechanisms governing the evolution of karst speleogenesis and evolution of karst aquifers, Speleogenesis Evol. Karst Aquifers, 1, 115–154, 2003.

Dreybrodt, W., Lauckner, J., Zaihua, L., Svensson, U., and Buhmann, D.: The kinetics of the reaction  $\text{CO}_2 + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{H}^+ + \text{HCO}_3^-$  as one of the rate limiting steps for the dissolution of calcite in the system  $\text{H}_2\text{O} \square \text{CO}_2 \square \text{CaCO}_3$ , Geochimica et Cosmochimica Acta, 60, 3375–3381, [https://doi.org/10.1016/0016-7037\(96\)00181-0](https://doi.org/10.1016/0016-7037(96)00181-0), 1996.

## BIBLIOGRAPHIE

- Du Mouza, J.: Les cavités souterraines de la région parisienne. Classification, conditions d'existence, méthodes de détection, thèse de doctorat, Université de Paris VI, Paris, 275 pp., 1975.
- Dullien, F. A. L. and Dhawan, G. K.: Characterization of pore structure by a combination of quantitative photomicrography and mercury porosimetry, *Journal of Colloid and Interface Science*, 47, 337–349, [https://doi.org/10.1016/0021-9797\(74\)90265-3](https://doi.org/10.1016/0021-9797(74)90265-3), 1974.
- Dumont, E.: Variabilité spatiale des formations gypsofères antéludiennes de la Plaine de France, 2021.
- Dunham, R. J.: Classification of Carbonate Rocks According to Depositional Texture<sup>1</sup>, in: *Classification of Carbonate Rocks—A Symposium*, American Association of Petroleum Geologists, <https://doi.org/10.1306/M1357>, 1962.
- Dutka, F., Starchenko, V., Osselin, F., Magni, S., Szymczak, P., and Ladd, A. J. C.: Time-dependent shapes of a dissolving mineral grain: Comparisons of simulations with microfluidic experiments, *Chemical Geology*, 540, 119459, <https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2019.119459>, 2020.
- Egermann, P., Bemmer, E., and Zinszner, B.: An experimental investigation of the rock properties evolution associated to different levels of CO<sub>2</sub> injection like alteration process, 2006.
- Ek, C.: La dissolution du carbonates de calcium. Essai de mise au point, *Bulletin de la société géographique de Liège*, 55–87, 1973.
- Erguler, Z. A. and Ulusay, R.: Water-induced variations in mechanical properties of clay-bearing rocks, *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences*, 46, 355–370, <https://doi.org/10.1016/j.ijrmms.2008.07.002>, 2009.
- Eslami, J.: Étude de l'endommagement à court et long terme d'une roche poreuse, 2010.
- Eyssautier, S., Marin, B., Thomachot-Schneider, C., Fronteau, G., Schneider, A., Gibeaux, S., and Vázquez, P.: Simulation of acid rain weathering effect on natural and artificial carbonate stones, *Environmental Earth Sciences*, 75, <https://doi.org/10.1007/s12665-016-5555-z>, 2016.
- Ezuber, H., Mrayed, S., and Altobli, M.: A simple correlation for predicting gypsum deposition from brine solutions, *South African Journal of Chemical Engineering*, 43, 104–111, <https://doi.org/10.1016/j.sajce.2022.10.002>, 2023.
- Fabre, D. and Dayre, M.: Propriétés géotechniques de gypses et anhydrites du Trias des alpes de savoie (France), *Bulletin de l'association internationale de géologie de l'ingénieur*, 91–98, 1982.
- Fabre, J.-P., Hoonakker, M., Cruchon, P., and Sessa, M.: Modernisation de la surveillance du barrage frontalier du Mont-Cenis exploité et surveillé en collaboration franco-italienne, 2015.
- Filliat, G.: La pratique des sols et fondations, Edition du Moniteur, Paris, 1392 pp., 1981.
- Finot, E., Lesniewska, E., Goudonnet, J.-P., Mutin, J.-C., Domenech, M., and Aït Kadi, A.: Correlating surface forces with surface reactivity of gypsum crystals by atomic force

## BIBLIOGRAPHIE

- microscopy. Comparison with rheological properties of plaster, *Solid State Ionics*, 141–142, 39–46, [https://doi.org/10.1016/S0167-2738\(01\)00718-4](https://doi.org/10.1016/S0167-2738(01)00718-4), 2001.
- Folk, R. L.: Practical Petrographic Classification of Limestones<sup>1</sup>, *AAPG Bulletin*, 43, 1–38, <https://doi.org/10.1306/0BDA5C36-16BD-11D7-8645000102C1865D>, 1959.
- Fontes, J.-C.: Le dossier du gypse parisien. Essai critique sur la notion de faciès, *Bulletin d'information des géologues du bassin de Paris*, 1–14, 1974.
- Foucault, A., Raoult, Jean-F., Cecca, F., and Platevoet, B.: *Dictionnaire de géologie*, 8th ed., Dunod, Paris, 416 pp., 2014.
- FracSima: Disroc, a Finite Element Code for modelling Thermo-Hydro-Mechanical processes in fractures porous media. (<http://www.fracsima.com/DISROC>), Paris, 2016.
- François, D., Pineau, A., and Zaoui, A.: *Comportement mécanique des matériaux*, 2ème édition., Hermès, Paris, 494 pp., 1992.
- Fredd, C. N. and Fogler, H. S.: Influence of Transport and Reaction on Wormhole Formation in Porous Media, *Aiche Journal*, 44, 1933–1949, 1998.
- Fripiat, J. J., Chaussidon, J., and Jelli, A.: *Chimie-physique des phénomènes de surface : applications aux oxydes et aux silicates*, 1971.
- Fronteau, G.: *Comportement tégénétiques des principaux calcaire de Champagne-Ardenne : en relation avec leurs faciès de dépôts et leur séquençage diagénétique*, thèse de doctorat, Université de Reims Champagne-Ardenne, Reims, 296 pp., 2000.
- Fu, Q., Lu, P., Konishi, H., Dilmore, R., Xu, H., Seyfried, W. E., and Zhu, C.: Coupled alkali-feldspar dissolution and secondary mineral precipitation in batch systems: 1. New experiments at 200 °C and 300 bars, *Chemical Geology*, 258, 125–135, <https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2008.09.014>, 2009.
- Fusseis, F., Schrank, C., Liu, J., Karrech, A., Llana-Funez, S., Xiao, X., and Regenauer-Lieb, K.: Pore formation during dehydration of a polycrystalline gypsum sample observed and quantified in a time-series synchrotron X-ray micro-tomography experiment, *Solid Earth*, 3, 857–900, <https://doi.org/10.5194/se-3-71-2012>, 2012.
- Gebauer, D. and Cölfen, H.: Prenucleation clusters and non-classical nucleation, *Nano Today*, 6, 564–584, <https://doi.org/10.1016/j.nantod.2011.10.005>, 2011.
- Gély, J.-P., Hanot, F., Amédéo, F., Bergerat, F., Debeglia, N., Delmas, J., Deroin, J.-P., Doligez, B., Dugué, O., Durand, M., Edel, J., Gaudant, J., Hanzo, M., Houel, P., Lorenz, J., Robaszynski, F., Robelin, C., Thierry, J., Vicelli, J., and Wyns, R.: *Le Bassin parisien, un nouveau regard sur la géologie.*, 2014.
- Géraud, Y.: *Perméabilité des roches et loi de Darcy*, Planet Terre, 2000.
- Ghabezloo, S. and Pouya, A.: Numerical modelling of the effect of weathering on the progressive failure of underground limestone mines, in: *Multiphysics Coupling and Long Term Behaviour in Rock Mechanics*, EUROROCK2006, Liège, <https://doi.org/10.1201/9781439833469.ch32>, 2006.

## BIBLIOGRAPHIE

- Giambastiani, M.: Comportamento dependente do tempo de rochas sulfáticas de anidrita e gipso, 2005.
- Gidon, M., Montjuvent, G., Flandrin, J., Moullade, M., Durozoy, G., and Damiani, L.: Notice explicative de la carte géologique de la feuille de Laragne-Montgélín (1/50 000) (893), 1ère., BRGM éditions, Orléans, 84 pp., 1991.
- Gilli, E.: Karstologie, Dunod, Paris, 244 pp., 2011.
- Giot, R., Hédan, S., and Cosenza, P.: Mécanique des roches Caractérisation physique et mécanique des roches, Techniques de l'ingénieur Mécanique des sols et géotechnique, base documentaire : TIP541WEB., <https://doi.org/10.51257/a-v2-c350>, 2023.
- Goerke, U. J., Park, C. H., Wang, W., Singh, A., and Kolditz, O.: Numerical Simulation of Multiphase Hydromechanical Processes Induced by CO<sub>2</sub> Injection into Deep Saline Aquifers, Oil & Gas Science and Technology-revue De L Institut Francais Du Petrole, 66, 105–118, 2011.
- Golfier, F.: Dissolution des roches carbonatées par injection d'acide, Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Toulouse, Toulouse, 160 pp., 2001.
- González-Acebrón, L., bullet, F., Barroso-Barcenilla, F., bullet, O., Cambra-Moo, O., Beatriz, C., bullet, M., and Segura, M.: Environmental significance of gypsum-bearing layers at the “Lo Hueco” paleontological site (Upper Cretaceous, Cuenca, Spain): Petrography, fluid inclusions, and isotopic relations, Facies, 60, <https://doi.org/10.1007/s10347-014-0402-8>, 2014.
- Gordilij, E. and Berest, P.: Characteristic features of salt cavern behavior, hal, 36, 2022.
- Grgic, D., Al Sahyouni, F., Golfier, F., Moumni, M., and Schoumacker, L.: Evolution of Gas Permeability of Rock Salt Under Different Loading Conditions and Implications on the Underground Hydrogen Storage in Salt Caverns, Rock Mechanics and Rock Engineering, 55, 1–24, <https://doi.org/10.1007/s00603-021-02681-y>, 2021.
- Gueguen, Y. and Palciauskas, V.: Introduction à la physique des roches, Hermann, Paris, 299 pp., 1992.
- Guerrero, J. and Gutiérrez, F.: Gypsum scarps and asymmetric fluvial valleys in evaporitic terrains. The role of river migration, landslides, karstification and lithology (Ebro River, NE Spain), Geomorphology, 297, 137–152, <https://doi.org/10.1016/j.geomorph.2017.09.018>, 2017.
- Guével, A., Rattez, H., and Veveakis, E.: Viscous phase-field modeling for chemo-mechanical microstructural evolution: application to geomaterials and pressure solution, International Journal of Solids and Structures, 207, 230–249, <https://doi.org/10.1016/j.ijsolstr.2020.09.026>, 2020.
- Guo, B., Hong, Y., Qiao, G., and Ou, J.: A COMSOL-PHREEQC interface for modeling the multi-species transport of saturated cement-based materials, Construction and Building Materials, 187, 839–853, <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2018.07.242>, 2018.

## BIBLIOGRAPHIE

- Guo, J., Quintard, M., and Laouafa, F.: Dispersion in Porous Media with Heterogeneous Nonlinear Reactions, *Transport in Porous Media*, 109, 541–570, <https://doi.org/10.1007/s11242-015-0535-4>, 2015.
- Guo, J., Laouafa, F., and Quintard, M.: A theoretical and numerical framework for modeling gypsum cavity dissolution, *International Journal for Numerical and Analytical Methods in Geomechanics*, 40, 1662–1689, <https://doi.org/10.1002/nag.2504>, 2016.
- Ha, H.: Modélisation du comportement et des couplages HMC des milieux poreux, mémoire de thèse, Université d'Orléans, Orlans, 191 pp., 2012.
- Haffen, S.: Caractéristique géothermiques du réservoir gréseux du Bundsandstein d'Alsace, Thèse de doctorat, Université de Strasbourg, Strasbourg, 392 pp., 2012.
- Hammecker, C.: Importance des transferts d'eau dans la dégradation des pierres, PhD Thesis, Université Louis Pasteur de Strasbourg, Strasbourg, 250 pp., 1993.
- Hawkins, A. B. and McConnell, B.: Sensitivity of sandstone strength and deformability to changes in moisture content, *Quarterly Journal of Engineering Geology*, 25, 115–130, 1992.
- Hoefner, M. L. and Fogler, H. S.: Pore evolution and channel formation during flow and reaction in porous media, *AIChE Journal*, 34, 45–54, <https://doi.org/10.1002/aic.690340107>, 1988.
- Hong, D., Fan, M., Yu, L., and Cao, J.: An experimental study simulating the dissolution of gypsum rock, *Energy Exploration & Exploitation*, 36, 014459871775192, <https://doi.org/10.1177/0144598717751927>, 2018.
- Hoxha, D., Giraud, A., and Homand, F.: Modelling long-term behaviour of a natural gypsum rock, *Mechanics of Materials*, 37, 1223–1241, <https://doi.org/10.1016/j.mechmat.2005.06.002>, 2005.
- Hu, M., Steefel, C., Rutqvist, J., and Gilbert, B.: Microscale THMC Modeling of Pressure Solution in Salt Rock: Impacts of Geometry and Temperature, *Rock Mechanics and Rock Engineering*, <https://doi.org/10.1007/s00603-022-03162-6>, 2022.
- Jambon, A. and Thomas, A.: *Géochimie, géodynamique et cycles*, Dunod, Paris, 406 pp., 2009.
- James, A. N. and Lupton, A. R. R.: Gypsum and anhydrite in foundations of hydraulic structures, *Geotechnique*, 28, 249–272, 1978.
- Janvier-Badosa, S., Beck, K., Brunetaud, X., Guirimand-Dufour, A., and Al-Mukhtar, M.: Gypsum and spalling decay mechanism of tuffeau limestone, *Environmental Earth Sciences*, 74, 2209–2221, 2015.
- Janvier-Badosa, S., Brunetaud, X., Beck, K., and Al-Mukhtar, M.: Kinetics of Stone Degradation of the Castle of Chambord in France, *International Journal of Architectural Heritage*, 10, 96–105, <https://doi.org/10.1080/15583058.2014.971194>, 2016.
- Jaworska, J.: 8 Crystallization, Alternation and Recrystallization of Sulphates, 465–490, <https://doi.org/10.13140/2.1.4282.4322>, 2012.

## BIBLIOGRAPHIE

Jemal, F.: Contribution à l'étude de l'impact de l'altération des géomatériaux dans leur environnement : Caractérisation de la dissolution du gypse, Université de Toulon, Toulon, 2019.

Jeschke, A. and Deybrodt, W.: Dissolution rates of minerals and their relation to surface morphology, *Geochimica et cosmochimica acta*, 66, 3055–3062, 2002.

Jeschke, A., Vosbeck, K., and Deybrodt, W.: Surface controlled dissolution rates of gypsum in aqueous solutions exhibit nonlinear dissolution kinetics, *Geochimica et cosmochimica acta*, 65, 27–34, 2001a.

Jeschke, A. A., Vosbeck, K., and Dreybrodt, W.: Surface controlled dissolution rates of gypsum in aqueous solutions exhibit nonlinear dissolution kinetics, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 65, 27–34, [https://doi.org/10.1016/S0016-7037\(00\)00510-X](https://doi.org/10.1016/S0016-7037(00)00510-X), 2001b.

Jianwei, G., Quintard, M., and Laouafa, F.: Dispersion in Porous Media with Heterogeneous Nonlinear Reactions, *Transport porous media*, 541–570, 2015.

Jin, Q., Perry, L. N., and Bullard, J. W.: Temperature dependence of gypsum dissolution rates, *Cement and Concrete Research*, 129, 105969, <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2019.105969>, 2020.

Julian, M. and Nicod, J. L.: Catastrophes naturelles et risques afférents aux terrains gypseux (Alpes et Provence), *Revue De Géographie Alpine-journal of Alpine Research*, 78, 157–173, 1990.

Junique, T.: Comportement des roches sous sollicitations thermiques et circulation de fluides, thèse de doctorat, Université de Reims Champagne-Ardenne, Reims, 335 pp., 2021.

Kang, Q., Chen, L., Valocchi, A. J., and Viswanathan, H. S.: Pore-scale study of dissolution-induced changes in permeability and porosity of porous media, *Journal of Hydrology*, 517, 1049–1055, <https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2014.06.045>, 2014.

Karrech, A. and Dong, X.: Modelling of Rock-Shotcrete Interfaces Using a Novel Bolted Cohesive Element, 170–177, [https://doi.org/10.1007/978-3-031-07746-3\\_17](https://doi.org/10.1007/978-3-031-07746-3_17), 2023.

Karrech, A., Regenauer-Lieb, K., and Poulet, T.: A damaged visco-plasticity model for pressure and temperature sensitive geomaterials, *International Journal of Engineering Science*, 49, 1141–1150, <https://doi.org/10.1016/j.ijengsci.2011.05.005>, 2011a.

Karrech, A., Regenauer-Lieb, K., and Poulet, T.: Continuum damage mechanics for the lithosphere, *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, 116, <https://doi.org/10.1029/2010JB007501>, 2011b.

Karrech, A., Fousseis, F., Schrank, C., and Regenauer-Lieb, K.: Thermo-poro-mechanics Modelling of Gypsum Dehydration, in: *Advances in Characterization and Analysis of Expansive Soils and Rocks*, Cham, 177–188, 2018.

Katz, A., Starinsky, A., Taitel-Goldman, N., and Beyth, M.: Solubilities of gypsum and halite in the Dead Sea and in its mixtures with seawater<sup>1</sup>, *Limnology and Oceanography*, 26, 709–716, <https://doi.org/10.4319/lo.1981.26.4.0709>, 1981.

## BIBLIOGRAPHIE

Keyence: Keyence, VHX-7000. Manuel d'utilisation, n.d.

Khaledi, K., Mahmoudi, E., Datcheva, M., and Schanz, T.: Stability and serviceability of underground energy storage caverns in rock salt subjected to mechanical cyclic loading, *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences*, 86, 115–131, <https://doi.org/10.1016/j.ijrmms.2016.04.010>, 2016.

Klimchouk, A.: Dissolution and conversions of gypsum and anhydrite, *international journal of speleology*, 25, 21–36, 1996a.

Klimchouk, A.: Gypsum karst in Western Ukraine, *International Journal of Speleology*, <https://doi.org/10.5038/1827-806X.25.3.20>, 1996b.

Klimchouk, A.: Speleogenesis in gypsum, *International Journal of Speleology*, <https://doi.org/10.5038/1827-806X.25.3.5>, 1996c.

Klimchouk, A.: The dissolution and conversion of Gypsum and Anhydrite, *International Journal of Speleology*, <https://doi.org/10.5038/1827-806X.25.3.2>, 1996d.

Klimchouk, A.: The typology of Gypsum karst according to its geological and geomorphological evolution, *International Journal of Speleology*, <https://doi.org/10.5038/1827-806X.25.3.4>, 1996e.

Klimchouk, A. and Aksem, S.: Hydrochemistry and solution rates in gypsum karst: Case study from the Western Ukraine, *Environmental Geology*, 48, 307–319, <https://doi.org/10.1007/s00254-005-1277-3>, 2005.

Klimchouk, A. and Andreychouk, V.: Gypsum Karst in the Southwest Outskirts of the Eastern European Platform (Western Ukraine): A Type Region of Artesian Transverse Speleogenesis, 363–385, [https://doi.org/10.1007/978-3-319-53348-3\\_23](https://doi.org/10.1007/978-3-319-53348-3_23), 2017.

Klimchouk, A., Lowe, D., Cooper, A., and Sauro, U.: Gypsum karst of the world, *international journal of speleology*, 25, 307, 1996a.

Klimchouk, A., Lowe, D., Cooper, A., and Sauro, U.: *Gypsum Karst of the World*, 1996b.

Klimchouk, A., Forti, P., and Cooper, A.: Gypsum karst of the World: a brief overview, *International Journal of Speleology*, <https://doi.org/10.5038/1827-806X.25.3.12>, 1996c.

Klinkenberg, L. J.: The Permeability Of Porous Media To Liquids And Gases, *Drilling and Production Practice*, 200–213, 1941.

Knudsen, M.: Die Gesetze der Molekularströmung und der inneren Reibungsströmung der Gase durch Röhren, *Annalen der Physik*, 333, 75–130, <https://doi.org/10.1002/andp.19093330106>, 1909.

Kolditz, O., Shao, H., Wang, W., and Bauer, S.: *Thermo-Hydro-Mechanical-Chemical Processes in Fractured Porous Media: Modelling and Benchmarking Closed-Form Solutions*, 1st ed., Springer Publishing Company, Incorporated, 390 pp., 2016.

Kozeny, J.: Ueber kapillare Leitung des Wassers im Boden, *Sitzungsber Akad. Wiss., Vienne*, 36 pp., 1927.

## BIBLIOGRAPHIE

- Kuechler, R., Noack, K., and Zorn, T.: Investigation of gypsum dissolution under saturated and undersaturated water conditions, *Ecological Modelling*, 1–14, 2003.
- Laouafa, F., Guo, J., and Quintard, M.: Modeling of salt and gypsum dissolution: applications, evaluation of geomechanical hazards, *null*, 25, 1405–1426, <https://doi.org/10.1080/19648189.2019.1579758>, 2019.
- Laouafa, F., Guo, J., and Quintard, M.: Underground Rock Dissolution and Geomechanical Issues, *Rock Mechanics and Rock Engineering*, 1–23, 2021.
- Laplace, P.: *Traité de mécanique céleste*, Courcier., Courcier, Paris, 1806.
- Larrere, F.: A15 - Sannois(95). Eléments de diagnostic géotechnique de désordre de chaussée, CEREMA, Paris, 2021.
- Le Maout, V.: Modélisation d'écoulements multiphasiques de fluides viscoélastiques en milieux poreux, Thèse de doctorat, Université de Bordeaux, Bordeaux, 152 pp., 2020.
- Lebedev, A.: Gypsum dissolution and leaching processes: The influence on permeability and porosity of fractured-porous rock massif, *Engineering Geology and the Environment*, 12, 1997.
- Lebedev, A.: A study of the rate of gypsum leaching from the pore space of sandstones, *Moscow university geology bulletin*, 72, 84–86, 2017.
- Lebedev, A. and Kosorukov, V.: Gypsum solubility in water at 25°C, *Geochemistry International*, 55, 205–210, <https://doi.org/10.1134/S0016702917010062>, 2017.
- Lebedev, A. L.: Kinetics of gypsum dissolution in water, *geochemistry international*, 53, 811–824, 2015.
- Lebedev, A. L. and Lekhov, A.: Dissolution kinetics of natural-gypsum in water at 5–25°C., *Lomonosov Moscow State university*, 85–94, 1989.
- lecomte, A.: Retour d'expérience des aléas liés à la présence de carrières souterraines au sein d'une zone urbaine, in: 11èmes Journées Nationales de Géotechnique et de Géologie de l'Ingénieur, Lyon, 2022.
- Lemaitre, J. and Chaboche, J.-L.: *Mécanique des matériaux solides*, Dunod, Paris, 532 pp., 1985.
- Lerouge, C., Grangeon, S., Gaucher, E. C., Tournassat, C., Agrinier, P., Guerrot, C., Widory, D., Fléhoc, C., Wille, G., Ramboz, C., Vinsot, A., and Buschaert, S.: Mineralogical and isotopic record of biotic and abiotic diagenesis of the Callovian–Oxfordian clayey formation of Bure (France), *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 75, 2633–2663, <https://doi.org/10.1016/j.gca.2011.02.025>, 2011.
- Levich, V. G.: *Physiochemical Hydrodynamics*, prentice-hall, Englewood Cliffs, 700 pp., 1962.
- Li, C., Hu, Y., Meng, T., Zhang, C., Gao, R., Jin, P., and Hu, Y.: Mode-I fracture toughness and mechanisms of Salt-Rock gypsum interlayers under real-time high-temperature



## BIBLIOGRAPHIE

conditions, *Engineering Fracture Mechanics*, 240, 107357, <https://doi.org/10.1016/j.engfracmech.2020.107357>, 2020.

Li, H., Li, T., Ning, X., Li, R., and Wang, Z.: A high-temperature Mohr-Coulomb criterion dependent on temperature, strain rate, and stress state for ductile fracture prediction, *Mechanics of Materials*, 164, 104121, <https://doi.org/10.1016/j.mechmat.2021.104121>, 2022.

Li, J. and Duan, Z.: A thermodynamic model for the prediction of phase equilibria and speciation in the H<sub>2</sub>O-CO<sub>2</sub>-NaCl-CaCO<sub>3</sub>-CaSO<sub>4</sub> system from 0 to 250°C, 1 to 1000 bar with NaCl concentrations up to halite saturation, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 75, 4351-4376, <https://doi.org/10.1016/j.gca.2011.05.019>, 2011.

Li, W., Einstein, H. H., and Germaine, J. T.: An Experimental Study of Matrix Dissolution and Wormhole Formation Using Gypsum Core Flood Tests: 1. Permeability Evolution and Wormhole Geometry Analysis, *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, 124, 11055-11073, <https://doi.org/10.1029/2018JB017238>, 2019a.

Li, W., Einstein, H. H., and Germaine, J. T.: An Experimental Study of Matrix Dissolution and Wormhole Formation Using Gypsum Core Flood Tests: 2. Dissolution Kinetics and Modeling, *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, 124, 11074-11088, <https://doi.org/10.1029/2019JB018092>, 2019b.

Liang, W., Yang, X., Gao, H., Zhang, C., Zhao, Y., and Dusseault, M. B.: Experimental study of mechanical properties of gypsum soaked in brine, *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences*, 53, 142-150, <https://doi.org/10.1016/j.ijrmms.2012.05.015>, 2012.

Liner, Malusis, M. A., and Kang, J.-B.: *Restricted Salt Diffusion in a Geosynthetic Clay*, 2018.

Linoir, D.: *Les horizons d'accumulations carbonatées (HAC) en Champagne-Ardenne ; répartition régionale, caractérisation et conséquences sur les transferts hydriques*, 2014.

Liu, J. and Zhou, C.: Permeability-porosity relation during erosion-induced water inrush: Experimental and theoretical investigations, *Transportation Geotechnics*, 38, 100893, <https://doi.org/10.1016/j.trgeo.2022.100893>, 2023.

Liu, S.-T. and Nancollas, G. H.: The kinetics of dissolution of calcium sulfate dihydrate, *Journal of Inorganic and Nuclear Chemistry*, 33, 2311-2316, [https://doi.org/10.1016/0022-1902\(71\)80205-1](https://doi.org/10.1016/0022-1902(71)80205-1), 1971.

Luhmann, A. J., Kong, X.-Z., Tutolo, B. M., Garapati, N., Bagley, B. C., Saar, M. O., and Seyfried, W. E.: Experimental dissolution of dolomite by CO<sub>2</sub>-charged brine at 100°C and 150bar: Evolution of porosity, permeability, and reactive surface area, *Chemical Geology*, 380, 145-160, <https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2014.05.001>, 2014.

Luo, H., Quintard, M., Debenest, G., and Laouafa, F.: Properties of a diffuse interface model based on a porous medium theory for solid-liquid dissolution problems, *Computational Geosciences*, 16, 913-932, <https://doi.org/10.1007/s10596-012-9295-1>, 2012.

Luo, H., Laouafa, F., Guo, J., and Quintard, M.: Numerical modeling of three-phase dissolution of underground cavities using a diffuse interface model, *International Journal for*

## BIBLIOGRAPHIE

- Numerical and Analytical Methods in Geomechanics, 38, 1600–1616, <https://doi.org/10.1002/nag.2274>, 2014.
- Luo, P., Wang, S., Hagen, P., Huang, Q., Cao, C., and Gamage, K.: Mechanical performances of cement-gypsum composite material containing a weak interlayer with different angles, *DYNA*, 94, 447–454, [https://doi.org/DOI: https://doi.org/10.6036/9191](https://doi.org/DOI:https://doi.org/10.6036/9191), 2019.
- MacDonald, G. J.: Anhydrite-gypsum equilibrium relations, *American Journal of Science*, 251, 884–898, 1953.
- Maheshwari, P., Ratnakar, R. R., Kalia, N., and Balakotaiah, V.: 3-D simulation and analysis of reactive dissolution and wormhole formation in carbonate rocks, *Chemical Engineering Science*, 90, 258–274, <https://doi.org/10.1016/j.ces.2012.12.032>, 2013.
- Marçot, N. and Thiebaud, E.: Les spécificités de la gestion du risque lié à la dissolution du gypse en région Sud Provence-Alpes-Côte-D’azur, 2018.
- Marshall, W. L. and Slusher, R.: Thermodynamics of Calcium Sulfate Dihydrate in Aqueous Sodium Chloride Solutions, 0-110 ° 1,2., *The journal of chemistry*, 70, 4015–4027, 1966.
- Marteau, P.: Mémento roches et minéraux industriels, gypse et anhydrite, BRGM, Orléans, 1993.
- Massard, P. and Desplan, A.: La cinétique de dissolution à 20°C du calcaire oolithique du DOgger, *Bulletin de Minéralogie*, 103, 317–323, 1980.
- Massieu, E.: étude Physico-mécanique sommaire du gypse de 3 carrières souterraines de la butte de l’Hautil, Laboratoire Centrale des Ponts et Chaussées, Paris, 1992.
- Massieu, E.: Etude du comportement au fluage du gypse provenant d’une carrière souterraine de gypse de la région parisienne, Laboratoire Centrale des Ponts et Chaussées, Paris, 1996.
- Massieu, E. and Martinet, L.: Essais triaxiaux sur du gypse provenant d’une carrière souterraine de la région parisienne, Laboratoire Centrale des Ponts et Chaussées, Paris, 1996.
- Masson, L.: Réduction du gonflement d’une montmorillonite sous sollicitation hygrique par l’utilisation de molécules organiques : application à la construction en terre crue, Thèse de doctorat, Université Gustave Eiffel, Champs-sur-Marne, 226 pp., 2021.
- Mauri, R.: Dispersion, convection, and reaction in porous media, *Physics of Fluids*, 3, 743–756, 1991.
- Maurin, J.-C., Gilbert, F., Robert, M., and Churlaud, C.: L’érosion chimique et l’érosion mécanique à long terme du substrat granitique (Vendée, France), *Comptes Rendus Geoscience*, 337, 841–848, <https://doi.org/10.1016/j.crte.2005.05.007>, 2005.
- de Meer, S. and Spiers, C. J.: Influence of pore-fluid salinity on pressure solution creep in gypsum, *Tectonophysics*, 308, 311–330, [https://doi.org/10.1016/S0040-1951\(99\)00110-9](https://doi.org/10.1016/S0040-1951(99)00110-9), 1999.

## BIBLIOGRAPHIE

- Meer, S. de and Spiers, C. J.: Influence of pore-fluid salinity on pressure solution creep in gypsum, *Tectonophysics*, 308, 311–330, [https://doi.org/10.1016/S0040-1951\(99\)00110-9](https://doi.org/10.1016/S0040-1951(99)00110-9), 1999.
- Mees, F., Castañeda, C., Herrero, J., and Van Ranst, E.: The Nature and Significance of Variations In Gypsum Crystal Morphology In Dry Lake Basins, *Journal of Sedimentary Research*, 82, 41–56, <https://doi.org/10.2110/jsr.2012.3>, 2012.
- Meng, T., Jianliang, P., Feng, G., Hu, Y., Zhang, Z., and Zhang, D.: Permeability and porosity in damaged salt interlayers under coupled THMC conditions, *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 211, 110218, <https://doi.org/10.1016/j.petrol.2022.110218>, 2022.
- Menke, H. P., Bijeljic, B., and Blunt, M. J.: Dynamic reservoir-condition microtomography of reactive transport in complex carbonates: Effect of initial pore structure and initial brine pH, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 204, 267–285, <https://doi.org/10.1016/j.gca.2017.01.053>, 2017.
- Mertz, J.-D.: Structure de porosité et propriétés de transport dans les grès, Thèse de doctorat, Université Louis-Pasteur, Strasbourg, 149 pp., 1991.
- Millero, F. J. and Berner, R. A.: Effect of pressure on carbonate equilibria in seawater, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 36, 92–98, [https://doi.org/10.1016/0016-7037\(72\)90123-8](https://doi.org/10.1016/0016-7037(72)90123-8), 1972.
- Miraghapour, S., Pirdashti, M., Arzideh, S. M., Mobalegholeslam, P., and Khoiroh, I.: Phase Equilibria of the Ternary System of Lithium Sulfate + Polyethylene Glycol (PEG3000) + Water at Different pH: Experiment Determination, Correlation, and Thermodynamic Modeling, *Journal of Chemical & Engineering Data*, <https://doi.org/10.1021/acs.jced.2c00592>, 2022.
- Mohamad-Hussein, A.: Modélisation du comportement mécanique des géomatériaux semi-fragiles soumis à des sollicitations mécaniques et à la dégradation chimique, 2007.
- Mohammed, A. and Mahmood, W.: Statistical Variations and New Correlation Models to Predict the Mechanical Behavior and Ultimate Shear Strength of Gypsum Rock, *Open Engineering*, 8, 213–226, <https://doi.org/doi:10.1515/eng-2018-0026>, 2018.
- Moiriat, D.: Evolution des désordres dans les carrières souterraines abandonnées, sciences, Paris Xi Orsay, Paris, 397 pp., 2001.
- Moiriat, D., Pothérat, P., Massieu, E., and Durville, J. L.: Données expérimentales sur le fluage du gypse saccharoïde en condition saturée, 2006.
- Morse, J. W. and Arvidson, R. S.: The dissolution kinetics of major sedimentary, *Earth Sciences reviews*, 58, 51–84, 2002.
- Nardi, A., Idiart, A., Trincherro, P., de Vries, L. M., and Molinero, J.: Interface COMSOL-PHREEQC (iCP), an efficient numerical framework for the solution of coupled multiphysics and geochemistry, *Computers & Geosciences*, 69, 10–21, <https://doi.org/10.1016/j.cageo.2014.04.011>, 2014.

## BIBLIOGRAPHIE

- Natasha, Khalid, S., Shahid, M., Rabbani, F., and Dumat, C.: Non-transition elements: Metals and metalloids in soils, in: *Encyclopedia of Soils in the Environment (Second Edition)*, edited by: Goss, M. J. and Oliver, M., Academic Press, Oxford, 214–224, <https://doi.org/10.1016/B978-0-12-822974-3.00176-2>, 2023.
- Nexer, M.: Etude conjointe des réseaux de drainage et des paléocôtes plio-quaternaires soulevées : exemples de l'Indonésie et du golfe Normand Breton, <https://doi.org/10.13140/RG.2.2.36395.13600>, 2015.
- Ngoc Bien, N.: Modélisation micromécanique des roches poreuses. Applications aux calcaires oolithiques, mémoire de thèse, Institut national Polytechnique de Lorraine, Nancy, 200 pp., 2010.
- Nguyen, T. S. and Selvadurdi, A. P. S.: Modelling of thermal consolidation of sparsely fractured rock in the context of nuclear waste management, in: *Mechanics of Poroelastic Media*, edited by: Selvadurai, A. P. S., Springer Netherlands, Dordrecht, 159–180, [https://doi.org/10.1007/978-94-015-8698-6\\_9](https://doi.org/10.1007/978-94-015-8698-6_9), 1996.
- Nicod, J.: karts des gypses et des évaporites associées, *Annales de Géographie*, 85, 513–544, 1976.
- Nicod, J.: Recherches nouvelles sur les karsts des gypses et des évaporites associées (Seconde partie : géomorphologie, hydrologie, et impact anthropique), *Karstologia*, 15–30, 1993.
- Nogues, J. P., Fitts, J. P., Celia, M. A., and Peters, C. A.: Permeability evolution due to dissolution and precipitation of carbonates using reactive transport modeling in pore networks, *Water Resources Research*, 49, 6006–6021, <https://doi.org/10.1002/wrcr.20486>, 2013.
- Nordstrom, D. and Campbell, K.: Modeling low-temperature geochemical processes, in: *Surface and Ground Water, Weathering, and Soils*. Holland, H.D., Turekian, K.K. (Ex. Eds.), *Treatise on Geochemistry*, vol. 7, 27–68, 2014.
- Norton, F. H.: Creep of steel at high temperatures, McGraw-Hill book company., New York, 90 pp., 1929.
- Oshchepkov, M., Popov, K., Kovalenko, A., Redchuk, A., Dikareva, J., and Pochitalkina, I.: Initial Stages of Gypsum Nucleation: The Role of “Nano/Microdust,” *Minerals*, 10, <https://doi.org/10.3390/min10121083>, 2020.
- Ouabel, Y.: Dissolution du gypse : étude des paramètres de la loi de cinétique de dissolution, Université Grenoble Alpes, Champs-sur-Marne, 2022.
- Oukhlef, A., Latrache, N., Champmartin, S., and Maiss, M.: Identification of the pore size distribution of a porous medium using oscillating Newtonian fluids, *Physics Letters A*, 460, 128615, <https://doi.org/10.1016/j.physleta.2022.128615>, 2023.
- Ouraga, Z. and Laouafa, F.: Mécanismes de dissolution du gypse - analyse des approches et modélisations numériques existantes, INERIS, 2020.
- Pan, P., Wu, Z., Feng, X., and Yan, F.: Geomechanical modeling of CO<sub>2</sub> geological storage: A review, *Journal of rock mechanics and geotechnical engineering*, 8, 936–947, 2016.

## BIBLIOGRAPHIE

- Parkhurst, D. L. and Appelo, C. A. J.: Description of Input and Examples for PHREEQC Version 3—A Computer Program for Speciation, Batch Reaction, One-Dimensional Transport, and Inverse Geochemical Calculations Chapter, U.S Geological Survey, Denver, 519 pp., 2013.
- Paukštys, B., Cooper, A. H., and Arustiene, J.: Planning for gypsum geohazards in Lithuania and England, *Engineering Geology*, 52, 93–103, [https://doi.org/10.1016/S0013-7952\(98\)00061-1](https://doi.org/10.1016/S0013-7952(98)00061-1), 1999.
- Pellerin, F., çois-Marie: Les altérations des maçonneries carbonatées des tunnels ferroviaires anciens, Université Pierre et Marie Curie, Paris, 231 pp., 1978.
- Poiseuille, J.-L.-M.: Recherches expérimentales sur le mouvement des liquides dans les tubes de très petits diamètres, *Académie des sciences*, 1167–1186, 1842.
- Poonoosamy, J., Westerwalbesloh, C., Deissmann, G., Mahrous, M., Curti, E., Churakov, S. V., Klinkenberg, M., Kohlheyer, D., von Lieres, E., Bosbach, D., and Prasianakis, N. I.: A microfluidic experiment and pore scale modelling diagnostics for assessing mineral precipitation and dissolution in confined spaces, *Chemical Geology*, 528, 119264, <https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2019.07.039>, 2019.
- Pötter, L., Tollrian, R., Wisotzky, F., and Weiss, L. C.: Determining freshwater pCO<sub>2</sub> based on geochemical calculation and modelling using PHREEQC, *MethodsX*, 8, 101430, <https://doi.org/10.1016/j.mex.2021.101430>, 2021.
- Poulet, T., Karrech, A., Regenauer-Lieb, K., Fisher, L., and Schaub, P.: Thermal–hydraulic–mechanical–chemical coupling with damage mechanics using ESCRIPTRT and ABAQUS, *Tectonophysics*, 526–529, 124–132, <https://doi.org/10.1016/j.tecto.2011.12.005>, 2012.
- Pouya, A.: Thermo-poro-élasticité, 2020.
- Purcell, W. R.: Capillary Pressures - Their Measurement Using Mercury and the Calculation of Permeability Therefrom, *Journal of Petroleum Technology*, 1, 39–48, <https://doi.org/10.2118/949039-G>, 1949.
- Raines, M. and Dewers, T.: Mixed transport reaction control of gypsum dissolution kinetics in aqueous solutions and initiation of gypsum karst, *Chemical geology*, 140, 29–48, 1997.
- Ramon, A., Caselle, C., Bonetto, S. M. R., Costanzo, D., and Alonso, E. E.: Effect of Microstructure and Relative Humidity on Strength and Creep of Gypsum, *Rock Mechanics and Rock Engineering*, 54, 4121–4145, <https://doi.org/10.1007/s00603-021-02510-2>, 2021.
- Reiss, A., Gavrieli, I., Rosenberg, Y., Reznik, I., Luttge, A., Emmanuel, S., and Ganor, J.: Gypsum Precipitation under Saline Conditions: Thermodynamics, Kinetics, Morphology, and Size Distribution, *Minerals*, 11, 141, <https://doi.org/10.3390/min11020141>, 2021.
- Reiss, A. G., Ganor, J., and Gavrieli, I.: Size Distribution and Morphology of Gypsum Crystals Precipitating from Hypersaline Solutions, *Crystal Growth & Design*, 19, 6954–6962, <https://doi.org/10.1021/acs.cgd.9b00735>, 2019.

## BIBLIOGRAPHIE

- Renard, M.: Teneurs en éléments traces des carbonates associés aux gypses Ludiens dans le sondage du Mont-Pagnotte (Oise). application au problème des conditions de dépôts du gypse du Bassin de Paris, *Bulletin d'information des géologues du bassin de Paris*, 23–30, 1974.
- Rendel, P., Gavrieli, I., Wolff-Boenisch, D., and Ganor, J.: Towards Establishing a combined rate law of Nucleation and Crystal Growth – the case study of gypsum precipitation, *Journal of Crystal Growth*, 485, 28–40, <https://doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2017.12.037>, 2018.
- Rendel, P. M., Gavrieli, I., Wolff-Boenisch, D., and Ganor, J.: Gypsum solubility under pressure conditions relevant to CO<sub>2</sub> geological storage, *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 55, 15–22, <https://doi.org/10.1016/j.ijggc.2016.10.017>, 2016.
- Reznik, I. J., Ganor, J., Gruber, C., and Gavrieli, I.: Towards the establishment of a general rate law for gypsum nucleation, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 85, 75–87, <https://doi.org/10.1016/j.gca.2012.02.002>, 2012.
- Rietveld, H. M.: A profile refinement method for nuclear and magnetic structures, *Journal of Applied Crystallography*, 2, 65–71, <https://doi.org/10.1107/S0021889869006558>, 1969.
- Rigby, S. P. and Daut, S.: A statistical model for the heterogeneous structure of porous catalyst pellets, *Advances in Colloid and Interface Science*, 98, 87–119, [https://doi.org/10.1016/S0001-8686\(01\)00091-4](https://doi.org/10.1016/S0001-8686(01)00091-4), 2002.
- Rigby, S. P., Fletcher, R. S., and Riley, S. N.: Characterization of Macroscopic Structural Disorder in Porous Media Using Mercury Porosimetry, *Journal of Colloid and Interface Science*, 240, 190–210, <https://doi.org/10.1006/jcis.2001.7636>, 2001.
- Rimstidt, J. D.: Quartz solubility at low temperatures, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 61, 2553–2558, [https://doi.org/10.1016/S0016-7037\(97\)00103-8](https://doi.org/10.1016/S0016-7037(97)00103-8), 1997.
- Ritter, H. L. and Drake, L. C.: Pressure Porosimeter and Determination of Complete Macropore-Size Distributions. Pressure Porosimeter and Determination of Complete Macropore-Size Distributions, *Industrial & Engineering Chemistry Analytical Edition*, 17, 782–786, 1945.
- Rivet, F., Girard, A., and Mathon, C.: Carte régionale de l'aléa d'effondrement/glisement lié à la présence de terrains gypseux triasiques en région Provence-Alpes-Côte d'Azur, BRGM, 2012.
- Rosenberg, Y. O., Reznik, I. J., Zmora-Nahum, S., and Ganor, J.: The effect of pH on the formation of a gypsum scale in the presence of a phosphonate antiscalant, *Desalination*, 284, 207–220, <https://doi.org/10.1016/j.desal.2011.08.061>, 2012.
- Rosenberg, Y. O., Sade, Z., and Ganor, J.: The precipitation of gypsum, celestine, and barite and coprecipitation of radium during seawater evaporation, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 233, 50–65, <https://doi.org/10.1016/j.gca.2018.04.019>, 2018.
- Rouchy, J., M. and Blanc-Valleron, M., M.: Les évaporites, matériaux singuliers, milieux extrêmes, Vuibert., Société géologique de France, 190 pp., 2006.

## BIBLIOGRAPHIE

- Rousset-Tournier, B.: Transferts par capillarité et évaporation dans des roches - Rôles des structures de porosité, thèse de doctorat, Université Louis Pasteur - Strasbourg i, Strasbourg, 305 pp., 2001.
- Rovera, G.: Instabilité des versants et dissolution des évaporites dans les Alpes internes : l'exemple de la montagne de Friolin (Peisey-nancroix, savoie), *Revue de géographie alpine*, 81, 71–84, 1993.
- Rühaak, W., Heldmann, C.-D., Pei, L., Bartels, J., Weinert, S., and Sass, I.: Thermo-Hydro-Mechanical-Chemical Coupled Modeling of Geothermal Doublet Systems in Limestones, 2015.
- Saad, A.: Influence du changement climatique et des conditions extrêmes sur les massifs fracturés : rôle des fluides (H<sub>2</sub>O, CO<sub>2</sub>) dans leurs processus d'altération, géotechnique, Université de Paris Est, paris, 286 pp., 2011.
- Sabouraud, C.: Etude des liquides inclus dans les cristaux du Gypse Parisien, *Bulletin d'information des géologues du bassin de Paris*, 19–21, 1974.
- Sadeghiamirshahidi, M. and Vitton, S. J.: Analysis of drying and saturating natural gypsum samples for mechanical testing, *Journal of Rock Mechanics and Geotechnical Engineering*, 2019.
- Saillio, M.: Interactions physico-chimiques ions-matrice dans les bétons sains ou carbonaté : influence sur le transport ionique, Thèse de doctorat, Université Paris-Est, Paris, 295 pp., 2012.
- Salomon, jean-N.: Précis de karstologie, 2nd ed., Presses universitaires de Bordeaux, Bordeaux, 288 pp., 2006.
- Serratrice, J.-F.: Comportement mécanique es gypses et argiles associées, Laboratoire Régionals des Ponts et Chaussées, Aix en Provence, 2012.
- Shackelford, C. D. and Scalia, J.: Semipermeable membrane behavior of geosynthetic clay liners, *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering*, 1260, 2022.
- Shen, L., Sippola, H., Li, X., Lindberg, D., and Taskinen, P.: Thermodynamic Modeling of Calcium Sulfate Hydrates in a CaSO<sub>4</sub> –H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> –H<sub>2</sub>O System from 273.15 to 473.15 K up to 5 m Sulfuric Acid, *Journal of Chemical & Engineering Data*, 65, 2310–2324, <https://doi.org/10.1021/acs.jced.9b00829>, 2020a.
- Shen, L., Sippola, H., Li, X., Lindberg, D., and Taskinen, P.: Thermodynamic Modeling of Calcium Sulfate Hydrates in a CaSO<sub>4</sub> –H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> –H<sub>2</sub>O System from 273.15 to 473.15 K up to 5 m Sulfuric Acid, *Journal of Chemical & Engineering Data*, 65, 2310–2324, <https://doi.org/10.1021/acs.jced.9b00829>, 2020b.
- Shukla, J., Mohandas, V., and Kumar, A.: Effect of pH on the Solubility of CaSO<sub>4</sub> · 2H<sub>2</sub>O in Aqueous NaCl Solutions and Physicochemical Solution Properties at 35 °C, *Journal of Chemical and Engineering Data - J CHEM ENG DATA*, 53, 2797–2800, <https://doi.org/10.1021/je800465f>, 2008.

## BIBLIOGRAPHIE

- Singh, M. V., Chhabra, R., and Abrol, I. P.: Interactions between applications of gypsum and zinc sulphate on the yield and chemical composition of rice grown on an alkali soil, *The Journal of Agricultural Science*, 108, 275–279, <https://doi.org/10.1017/S0021859600079260>, 1987.
- Sitthimongkol, L.: transverse isotropic effect on mechanical properties of gypsum, Suranaree University of Technology, Nakhon Ratchasima, 92 pp., 2021.
- Sjöberg, E.: A fundamental equation for calcite dissolution kinetics, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 40, 441–470, 1976.
- Stoter, S. K. F., Müller, P., Cicalese, L., Tuveri, M., Schillinger, D., and Hughes, T. J. R.: A diffuse interface method for the Navier–Stokes/Darcy equations: Perfusion profile for a patient-specific human liver based on MRI scans, *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, 321, 70–102, <https://doi.org/10.1016/j.cma.2017.04.002>, 2017.
- Sun, J., Wang, L., and Yu, G.: Effects of Na, Ca, Mg, and Al Chloride Salts on Dissolution and Phase Stability of Calcium Sulfate Dihydrate in Aqueous Solutions at 278.15 K to 308.15 K., *Journal of chemical & engineering data*, 60, 2559–2566, 2015.
- Tang, J., Bullard, J. W., Perry, L. N., Feng, P., and Liu, J.: An empirical rate law for gypsum powder dissolution, *Chemical Geology*, 498, 96–105, <https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2018.09.013>, 2018.
- Taylor, G. I.: Dispersion of soluble matter in solvent flowing slowly through a tube, *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences*, 219, 186–203, <https://doi.org/10.1098/rspa.1953.0139>, 1953.
- Taylor, G. I.: The dispersion of matter in turbulent flow through a pipe, *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences*, 223, 446–468, <https://doi.org/10.1098/rspa.1954.0130>, 1954.
- Temam, R.: A generalized Norton-Hoff model and the Prandtl-Reuss law of plasticity, *Archive for Rational Mechanics and Analysis*, 95, 137–183, <https://doi.org/10.1007/BF00281085>, 1986.
- Terzaghi, K.: Pressure due to capillary in Drying concrete, *BA ingénieur*, 15, 303–306, 1934.
- Thiéry, D.: Modélisation 3D du Transport Réactif avec le code de calcul MARTHE v7.5 couplé aux modules géochimiques de PHREEQC, BRGM, Orléans, 2016.
- Thode, H. G. and Monster, J.: Sulfur-Isotope Geochemistry of Petroleum, Evaporites, and Ancient Seas 1, in: *Fluids in Subsurface Environments*, American Association of Petroleum Geologists, <https://doi.org/10.1306/M4360C15>, 1965.
- Thode, H. G., Monster, J., and Dunford, H. B.: Sulphur isotope geochemistry, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 25, 159–174, [https://doi.org/10.1016/0016-7037\(61\)90074-6](https://doi.org/10.1016/0016-7037(61)90074-6), 1961.
- Thoraval, A., Lahaie, F., Brouard, B., and Berest, P.: A generic model for predicting long-term behavior of storage salt caverns after their abandonment as an aid to risk assessment, *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences*, 77, 44–59, <https://doi.org/10.1016/j.ijrmms.2014.10.014>, 2015.



## BIBLIOGRAPHIE

Thorin, R.: Le faciès de substitution des masses et marnes du gypse. Compte rendu de travail, Laboratoire Centrale des Ponts et Chaussées, trappes, 1984.

Tisato, N., Sauro, F., Bernasconi, S. M., Bruijn, R. H. C., and De Waele, J.: Hypogenic contribution to speleogenesis in a predominant epigenic karst system: A case study from the Venetian Alps, Italy, *Geomorphology*, 151–152, 156–163, <https://doi.org/10.1016/j.geomorph.2012.01.025>, 2012.

Tomachot, C.: Modification des propriétés pétrophysiques de grès soumis au gel ou recouverts “d’encroûtements noirs vernissés,” mémoire de thèse, Université Louis Pasteur de Strasbourg, Strasbourg, 346 pp., 2002.

Toulemont, M.: Observation géologique sur les accidents de dissolution du gypse dans la région parisienne, Congrès international de géologie de l’ingénieur, 89–98, 1970.

Toulemont, M.: Les problèmes de reconnaissance générale des zones gypseuses à urbaniser. Cas du Nord-Est de Paris, *Bulletin de liaison du laboratoire des ponts et chaussés*, 84–96, 1974.

Toulemont, M.: Evolution actuelle des massifs gypseux par lessivage; CAs des gypses lutétiens de la région parisienne, France, *Bulletin de liaison du laboratoire des ponts et chaussés*, 35–48, 1981.

Toulemont, M.: Les épigénies siliceuses du gypse lutétien du Bassin de Paris, *Bulletin des sciences géologiques*, 35, 13, 1982.

Toulemont, M.: Les gypses lutétiens du bassin de Paris. Sédimentation, karstification et conséquences géotechniques, Thèse de doctorat d’Etat, Université de Paris-Sud Centre d’Orsay, Paris, 320 pp., 1986.

Toulemont, M.: Les risques d’instabilité liés au karst gypseux lutétiende la région parisienne, prévision en cartographie, *Bulletin de liaison du laboratoire des ponts et chaussés*, 109–116, 1987.

Tounsi, H., Pouya, A., and Rohmer, J.: Coupled hydro-chemo-mechanical model for fault activation under reactive fluid injection, 2020.

Tounsi, H., Lerche, S., Wolters, R., Hu, M., and Ruqvist, J.: Impact of the Compaction Behavior of Crushed Salt on The Thermo-Hydro-Mechanical Response of a Generic Salt Repository For Heat-Generating Nuclear Waste, *SSRN Electronic Journal*, <https://doi.org/10.2139/ssrn.4385380>, 2023.

Tourenq, C., Fourmaintraux, D., and Denis, A.: Propagation des ondes et discontinuités des roches, *Proceedings Symposium, nancy*, 1971.

Travelletti, J., Bardou, E., Correia Demand, J., Jaboyedoff, M., and Marillier, F.: Large landslide combined with mud/soil flows on weathered gypsum substratum, 2007.

Tritsch, J., Durville, J.-L., and Potherat, P.: Evaluation des aléas liés aux cavités souterraines : un guide technique, in: *Journées nationales de la geotechniques*, Lille, 493–502, 2004.

## BIBLIOGRAPHIE

- Trukhina, M., Popov, K., Oshchepkov, M., Tkachenko, S., Vorob'eva, A., and Rudakova, G.: An impact of colloidal iron hydroxide and colloidal silicon dioxide on calcium sulfate crystallization in presence of antiscalants, *International Journal of Corrosion and Scale Inhibition*, 11, 1147–1171, <https://doi.org/10.17675/2305-6894-2022-11-3-15>, 2022.
- Tsang, C.-F.: Coupled hydromechanical-thermochemical processes in rock fractures, *Reviews of Geophysics*, 29, 537–551, <https://doi.org/10.1029/91RG01832>, 1991.
- Turmel, A.: Répartition et utilisation des pierres et géomatériaux de construction dans le bâti du Pays rémois - analyse spatiale et propriétés pétrophysiques -, PhD Thesis, Université de Reims Champagne-Ardenne, Reims, 2014.
- Vachat, J.-C.: Les désordres survenant dans les carrières de la région parisienne. Etude théorique et pratique de l'évolution des fontis, Conservatoire national des Arts et métiers, Paris, 1982.
- Vakhrushev, A., Kharicha, A., Wu, M., Ludwig, A., Nitzl, G., Tang, Y., Hackl, G., Watzinger, J., and Rodrigues, C. M. G.: Norton-Hoff model for deformation of growing solid shell of thin slab casting in funnel-shape mold, *Journal of Iron and Steel Research International*, 29, 88–102, <https://doi.org/10.1007/s42243-021-00734-8>, 2022.
- Van Eeckhout, E. M.: The mechanisms of strength reduction due to moisture in coal mine shales, *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences & Geomechanics Abstracts*, 13, 61–67, [https://doi.org/10.1016/0148-9062\(76\)90705-1](https://doi.org/10.1016/0148-9062(76)90705-1), 1976.
- Vasarhelyi, B. and Ván, P.: Influence of Water Content on the Strength of Rock. *Eng Geol* 84:70-74 Elsevier B.V, *Engineering Geology*, 84, 70–74, <https://doi.org/10.1016/j.enggeo.2005.11.011>, 2006.
- Vázquez, P., Alonso, F. J., Carrizo, L., Molina, E., Cultrone, G., Blanco, M., and Zamora, I.: Evaluation of the petrophysical properties of sedimentary building stones in order to establish quality criteria, *Construction and Building Materials*, 41, 868–878, <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2012.12.026>, 2013.
- Verma, A. and Pruess, K.: Thermohydrological conditions and silica redistribution near high-level nuclear wastes emplaced in saturated geological formations, *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, 93, 1159–1173, <https://doi.org/10.1029/JB093iB02p01159>, 1988.
- Vigna, B., Fiorucci, A., Banzato, C., Forti, P., and De Waele, J.: Hypogene gypsum karst and sinkhole formation at Moncalvo (Asti, Italy), *Zeitschrift für Geomorphologie, Supplementary Issues*, 54, 285–306, <https://doi.org/10.1127/0372-8854/2010/0054S2-0015>, 2010.
- Vigroux, M.: Influence de la microstructure et de la minéralogie sur l'endommagement mécanique des pierres de construction utilisées dans le patrimoine bâti sous l'effet de conditions environnementales sévères, *Génie Civile*, Université de Cergy Pontoise, Pontoise, 397 pp., 2020.
- Wang, T., Yang, C., Ma, H., Li, Y., Shi, X., Li, J., and Daemen, J. J. K.: Safety evaluation of salt cavern gas storage close to an old cavern, *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences*, 83, 95–106, <https://doi.org/10.1016/j.ijrmms.2016.01.005>, 2016.

## BIBLIOGRAPHIE

- Wardlaw, N. C. and Mckellar, M.: Mercury porosimetry and the interpretation of pore geometry in sedimentary rocks and artificial models, *Powder Technology*, 29, 127–143, 1981.
- Wardlaw, N. C., Mckellar, M., and Yu, L.: Pore and throat size distributions determined by mercury porosimetry and by direct observation, *Carbonates and Evaporites*, 3, 1–16, 1988.
- Warren, J. K.: Evaporites through time: Tectonic, climatic and eustatic controls in marine and nonmarine deposits, *Earth-Science Reviews*, 98, 217–268, <https://doi.org/10.1016/j.earscirev.2009.11.004>, 2010.
- Washburn, E. W.: The Dynamics of Capillary Flow, *Phys. Rev.*, 17, 273–283, <https://doi.org/10.1103/PhysRev.17.273>, 1921.
- Wu, T., Fu, X., Liu, B., Wang, H., Xie, Z., and Pan, Z.: Mechanical behavior and damage-induced permeability evolution of mudstone and gypsum caprocks, *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 196, 108079, <https://doi.org/10.1016/j.petrol.2020.108079>, 2021.
- Wu, W., Zheng, H., Yang, J., Luo, C., and Zhou, B.: Chemical weathering, atmospheric CO<sub>2</sub> consumption, and the controlling factors in a subtropical metamorphic-hosted watershed, *Chemical Geology*, 356, 141–150, 2013.
- Wyns, R.: Le Bassin parisien du Tertiaire à l'Actuel, 85–93, 2014.
- Xiaodong, L., Prikryl, R., and Pusch, R.: THMC-testing of three expandable clays of potential use in HLW repositories, *Applied Clay Science*, 52, 419–427, 2011.
- Xie, X., Fjær, E., and Detournay, E.: Time-dependent closure of a borehole in a viscoplastic rock, *Geomechanics for Energy and the Environment*, 19, 100115, <https://doi.org/10.1016/j.gete.2019.02.001>, 2019.
- Yaghkob, I.: Analyse numérique discrète de l'aléa fontis et du foisonnement associés aux cavités souterraines, 2017.
- Yale, D. P.: Network modelling of low, storage and deformation in porous rocks, PhD Thesis, Stanford university, Californie, 167 pp., 1984.
- Yang, X.: An experimental study of H solubility in feldspars: Effect of composition, oxygen fugacity, temperature and pressure and implications for crustal processes, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 97, 46–57, <https://doi.org/10.1016/j.gca.2012.08.036>, 2012.
- Yin, S., Dusseault, M. B., and Rothenburg, L.: Coupled THMC modeling of CO<sub>2</sub> injection by finite element methods, *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 80, 53–60, <https://doi.org/10.1016/j.petrol.2011.10.008>, 2011.
- Yin, S., Zhou, W., Shan, Y., Ding, W., Xie, R., and Guo, C.: Assessment of the geostress field of deep-thick gypsum cap rocks: A case study of Paleogene Formation in the southwestern Tarim Basin, NW China, *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 154, 76–90, <https://doi.org/10.1016/j.petrol.2017.04.021>, 2017.
- Young, T.: Miscellaneous works, G. Peacock, Londres, 418 pp., 1855.

## BIBLIOGRAPHIE

Yu, L., Daniels, L. M., Mulders, J. J. P. A., Saldi, G. D., Harrison, A. L., Liu, L., and Oelkers, E. H.: An experimental study of gypsum dissolution coupled to CaCO<sub>3</sub> precipitation and its application to carbon storage, *Chemical Geology*, 525, 447–461, <https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2019.08.005>, 2019.

Zaier, I.: Rôle du transport particulaire lié à la déstructuration de gypses poreux dans le développement de cavité de dissolution, mémoire de thèse, Mines Paris Tech, Paris, 233 pp., 2021.

Zaier, I., Billiotte, J., Charmoille, A., and Laouafa, F.: The dissolution kinetics of natural gypsum: a case study of Eocene facies in the north-eastern suburbs of Paris, *Environmental Earth Sciences*, 80, 16, 2021.

Zaier, I., Billiotte, J., De Windt, L., and Charmoille, A.: The impact of common impurities present in gypsum deposits on in situ dissolution kinetics, *Environmental Earth Sciences*, 82, 31, <https://doi.org/10.1007/s12665-022-10710-4>, 2022.

Zakharova, E. A., Pokrovsky, O. S., Dupré, B., Gaillardet, J., and Efimova, L. E.: Chemical weathering of silicate rocks in Karelia region and Kola peninsula, NW Russia: Assessing the effect of rock composition, wetlands and vegetation, *Chemical Geology*, 242, 255–277, <https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2007.03.018>, 2007.

Zhang, D. and Song, J.: Mechanisms for Geological Carbon Sequestration, *Procedia IUTAM*, 10, 319–327, <https://doi.org/10.1016/j.piutam.2014.01.027>, 2014.

Zhang, J. and Nancollas, G. H.: Influence of calcium/sulfate molar ratio on the growth rate of calcium sulfate dihydrate at constant supersaturation, *Journal of Crystal Growth*, 118, 287–294, [https://doi.org/10.1016/0022-0248\(92\)90073-R](https://doi.org/10.1016/0022-0248(92)90073-R), 1992.

Zhang, Y.: Modélisation du comportement élastoplastique d'une pâte cimentaire soumise à la dégradation chimique, Thèse de doctorat, Université des sciences et technologies de Lille, Lille, 111 pp., 2008.

Zheng, L., Rutqvist, J., Xu, H., and Birkholzer, J. T.: Coupled THMC models for bentonite in an argillite repository for nuclear waste: Illitization and its effect on swelling stress under high temperature, *Engineering Geology*, 230, 118–129, 2017.

Zhu, C., Xu, X., Liu, W., Xiong, F., Lin, Y., Cao, C., and Liu, X.: Softening Damage Analysis of Gypsum Rock With Water Immersion Time Based on Laboratory Experiment, *IEEE Access*, 7, 125575–125585, <https://doi.org/10.1109/ACCESS.2019.2939013>, 2019.

Zhu Yanbo, Huang Xing, Liu Yaowen, Liu Zhenqian, Lan Hengxing, and Tian Wanghui: Nonlinear Viscoelastoplastic Fatigue Model for Natural Gypsum Rock Subjected to Various Cyclic Loading Conditions, *International Journal of Geomechanics*, 21, 04021062, [https://doi.org/10.1061/\(ASCE\)GM.1943-5622.0001982](https://doi.org/10.1061/(ASCE)GM.1943-5622.0001982), 2021.

ANNEXE

**ANNEXE**

## I. Annexes du chapitre 1

### **Annexe 1.A : Une brève histoire du Bassin parisien**

Les travaux de cette thèse portent sur 5 faciès de gypse dont quatre proviennent de la région parisienne et un du Sud-Est de la France (Hautes-Alpes). Les gypses provenant de la région parisienne ont une teneur en gypse supérieure à 90%. Il s'agit des faciès matriciel, saccharoïde pure, fer de lance et albastroïde (les faciès seront définis et localisés dans le chapitre 2). Le gypse méridional est d'une teneur de 60% est de morphologie saccharoïde avec des interlits d'argiles et d'oxydes. Les morphologies matricielles et saccharoïdes (pur et à interlits) proviennent de carrière en activité. A la demande de l'entreprise, les sites d'extractions ne seront pas nommés ; nous nous contenterons donc d'une description générale des couches dont sont issus les échantillons. Une description plus poussée de la caractérisation et de la définition des faciès sera donnée lors de leurs caractérisations en chapitre 3.

Une large partie du Nord de la France est occupée par le Bassin parisien. Il s'agit d'un bassin d'accumulation sédimentaire actif depuis le Trias (-255 Ma). D'une profondeur maximale de 3500 m, Il couvre une superficie de 120 000 km<sup>2</sup> (Figure 206A) avec comme délimitation :

- Nord : Le seuil d'Artois
- Ouest : le Massif armoricain
- Sud-Ouest : le seuil du Poitou
- Sud : le Massif Central
- Est : les Vosges
- Nord Est : le Massif ardennais

Les sédiments à l'origine de ses roches du Bassin parisien se sont accumulées sur un socle hercynien délimité par les massifs cités ci-dessus. Ils s'accumuleront en auréole concave (Figure 206B). Ces couches seront ensuite partiellement érodées lors des périodes d'émersion pour constituer les reliefs actuels. Un des principaux reliefs sera celui de cuestas issues de l'érosion différentielle des couches. Cette altération couplée à un léger pendage Est/Ouest générera ces côtes.

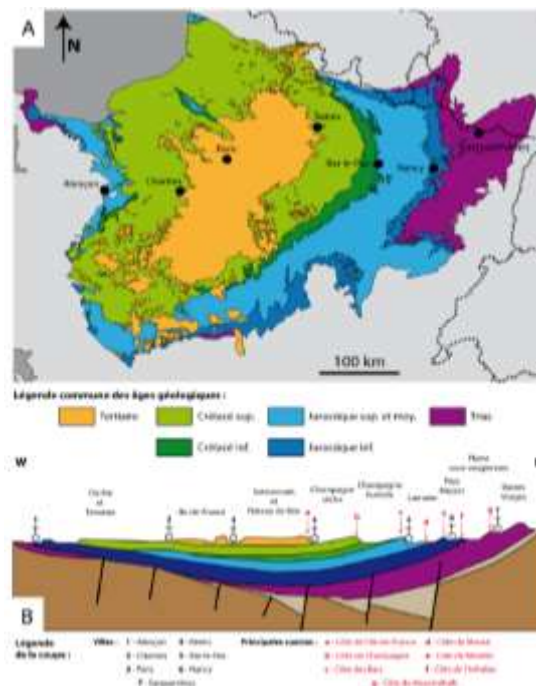


Figure 206 : A : Carte géologique. B : coupe géologique simplifiée du bassin parisien. Source (Linoir, 2014)

**a) Trias (-252 à -201 Ma)**

A partir du trias, le bassin sédimentaire parisien va connaître des successions de cycles de transgression/régression continuent jusqu'à l'actuel. Lors de son ouverture au Trias, le bassin est orienté vers l'Ouest et le bassin germanique. Il sera le lieu privilégié pour l'accumulation des dépôts d'altération des massifs hercyniens environnants dans les premières phases de cette période (conglomérats, grès rose des Vosges ...). Une importante transgression marine de faible bathymétrie recouvrira l'Est de la France et conduira à la formation d'importants dépôts salifères et gypseux. C'est de ces dépôts qu'est issu notre gypse méridional (Hautes-Alpes).

**b) Jurassique (- 201 à 145 Ma)**

Au cours de cette période, le Bassin parisien sera le lieu de sa plus importante transgression marine avec son apogée au Dogger. Puis une lente régression. A cette période, les courants marins proviennent d'une orientation Sud-Est et l'océan Téthys. Ce cycle majeur, déposera essentiellement des calcaires, des marnes et des argiles en fonction des localisations et du niveau marin pour l'époque considérée.

**c) Crétacé (-145 à -66 Ma)**

Cette période sera marquée par un premier cycle de transgression et de régression au Crétacé inférieur et composée d'argiles et de calcaires. C'est au Crétacé supérieure qu'interviendra une importante transgression dont sont issues les épaisses couches de craie du Nord et de l'Est de la France avant un important recule à la fin du Mésozoïque. Avec la coupure des apports d'eaux téthysiennes.

**d) Paléogène (-66 à 23 Ma)**

Le Bassin parisien passe sous l'influence de l'océan Atlantique avec le soulèvement dû à la compression pyrénéenne (Wyns, 2014). Le début du paléogène est ainsi marquée par une phase de régression importante avant le retour des cycles de transgressions régressions (Figure 207). Ils seront dorénavant d'amplitude plus faible. Ils atteignent pour les cycles plus importants la région de Reims et une bathymétrie d'environ 50 m. Les dépôts sont très hétérogènes avec une forte variabilité latérale du fait de la faible profondeur. Il se dépose ainsi des argiles (Yprésien), des sables (Cuisien), des calcaires de tous types (lacustres, marins, récifal...), marnes .... C'est à cette époque qu'auront les plus importants dépôts de gypses. D'abord au lutétien supérieur, dont une partie sera dissoute ultérieurement, puis au Priabonien qui constitue l'essentiel des masses de gypse actuellement observable dans la région parisienne et dont sont issus nos échantillons. Des descriptions plus détaillées de ces formations seront faites dans la partie suivante.

**e) Néogène (-23 à 2,5 Ma)**

Le bassin parisien sera essentiellement émergé et ne se composera que de 2 cycles de transgressions régressions de faible importance avec des dépôts sableux et argileux. La période est marquée par l'enfoncement du réseau hydrographique sous l'effet de l'orogénèse alpine. L'essentiel de la sédimentation se composera de formation laguno-fluviale et lacustre

**f) Quaternaire (Depuis 2,5 Ma)**

Le bassin parisien est sous l'influence des cycles glaciaires/interglaciaires. Les couches géologiques subissent ainsi des phénomènes d'érosions finalisant la mise en place actuelle de la géomorphologie, comme les percées cataclinales. Cette période est également marquée par d'importants dépôts de loess (Formation superficielle).

## ANNEXE

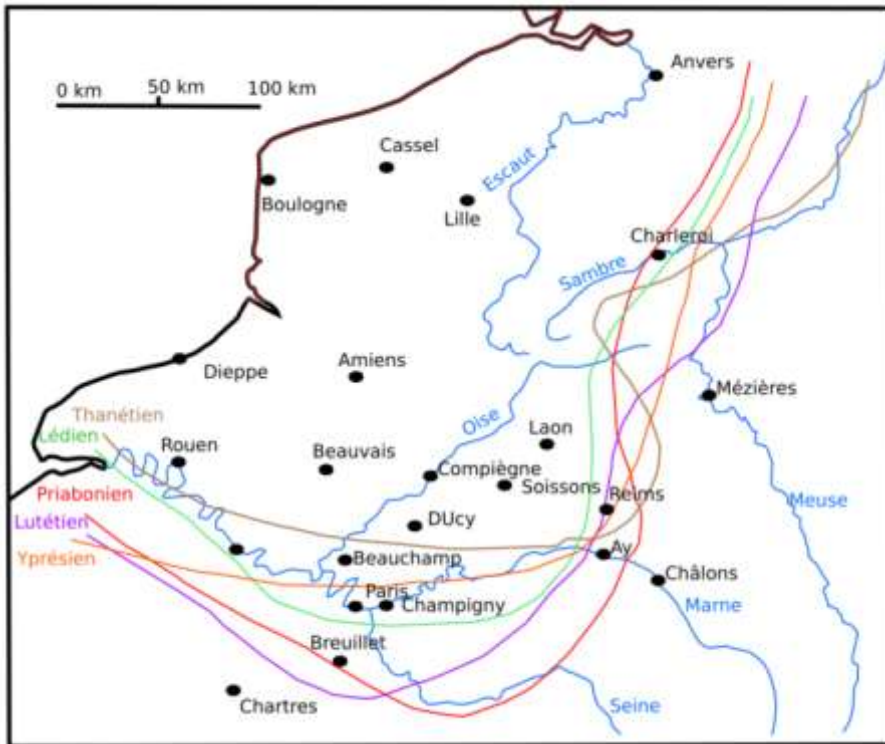
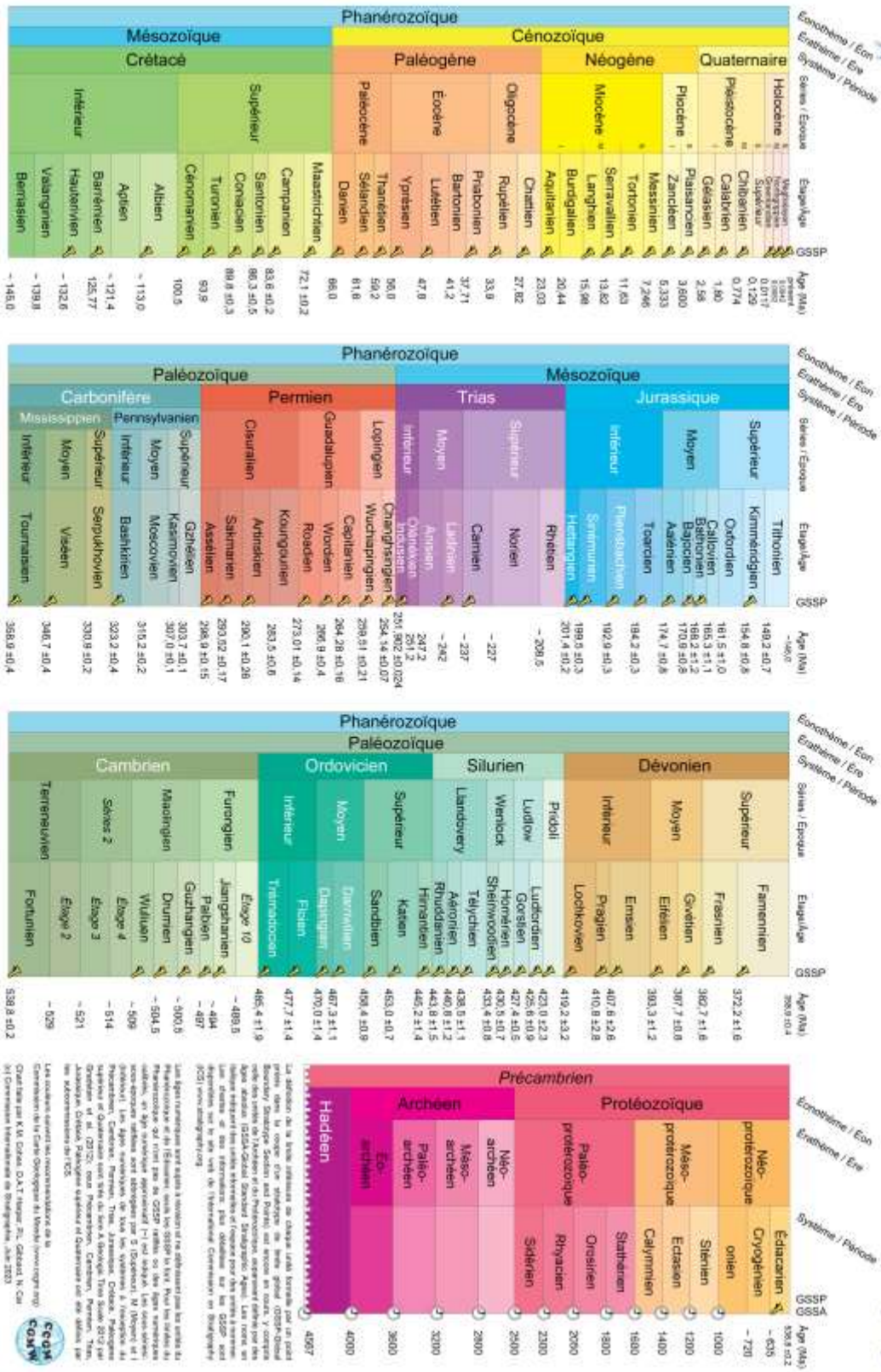


Figure 207 : limite d'extension des cycles de transgressions/régressions au Paléocène. Source Modifié d'après (Delfau, 1974)



Annexe 1.B : Échelle chrono stratigraphique



## **Annexe 1.C : Aléas cavités du gypse**

### ***1) Exploitation et effondrement de carrière souterraine***

#### **a) Les galeries**

Dans la région parisienne, les principales couches de gypse exploitées sont datées du Priabonien. Elles sont essentiellement localisées dans des buttes témoins dans Paris même (Buttes-Chaumont, Montmartre...) et dans sa région (Massif de l'Hautil, Villeparisis, Vaujours...), comme décrites précédemment.

La majorité des exploitations a commencé par des carrières à ciel ouvert avant d'entamer une exploitation souterraine. Le passage en souterrain s'est effectué par des puits d'accès ou des bouches de cavages (voir glossaire) en flanc de colline. Les galeries ont 3 types de géométrie selon les lieux d'exploitation et la masse de gypse concernés :

- ogivale pour les galeries de 1<sup>ère</sup> masse (hauteur de 17 m) (Vachat 1982)
- carrée sur des hauteurs de 7 m maximum
- trapézoïdale sur des hauteurs de 7 m maximum

Les exploitations souterraines ont été creusées selon la méthode des piliers tournés. Il s'agit de tracer des galeries parallèles qui seront ensuite raccordées par des galeries perpendiculaires. L'extraction dans une galerie avait lieu par la technique des banquettes. La forme trapézoïdale présentait également l'avantage d'une consolidation de la structure et par des étais (Figure 208). Les galeries mesuraient environ 3 m de large en toit pour 5 à 6 m en base de pilier. La masse était exploitée sur toute sa hauteur selon un étage successif, chacun d'environ 2 m de haut. Le façonnage des banquettes se fait de haut en bas. La galerie de toit, appelée le four, sert à mettre en place un boisement important (Figure 209A) pour aider à maintenir en place le gypse, réputé peu résistant. De même que pour les bancs calcaires (Fronteau, 2000; Gély et al., 2014), les carriers ont utilisé des dénominations pour chaque strate de gypse afin de se repérer dans la masse. Ces dénominations sont dues à des paramètres divers (couleur, dureté...) et elles sont aussi le signe de la variabilité de propriétés, et le premier indice de la variabilité possible du gypse.

La première masse conservait un toit de gypse d'environ 1,8 m et ne commençait le plus souvent qu'au banc « les moutons ». Les masses inférieures étaient quant à elle exploitées sur l'ensemble de la hauteur. Le toit de la première masse était renforcé par d'importants étais en bois (

Figure 209). L'accès aux masses inférieures se faisait généralement par des puits creusés dans le plancher de la masse sus-jacente. Dans le cas d'une exploitation superposée de masses de gypse, les piliers devaient être positionnés de manière superposée pour éviter un risque accru d'effondrement. Le taux de défrètement ( voir glossaire (le volume extrait sur l'ensemble du volume de matériau) était souvent de 60 à 70% dans le gypse (Du Mouza, 1975; Vachat, 1982; Cailleux et al., 1989; Auvray, 2003). Il s'agit de volume important pour un matériau friable et réputé peu résistant.

ANNEXE

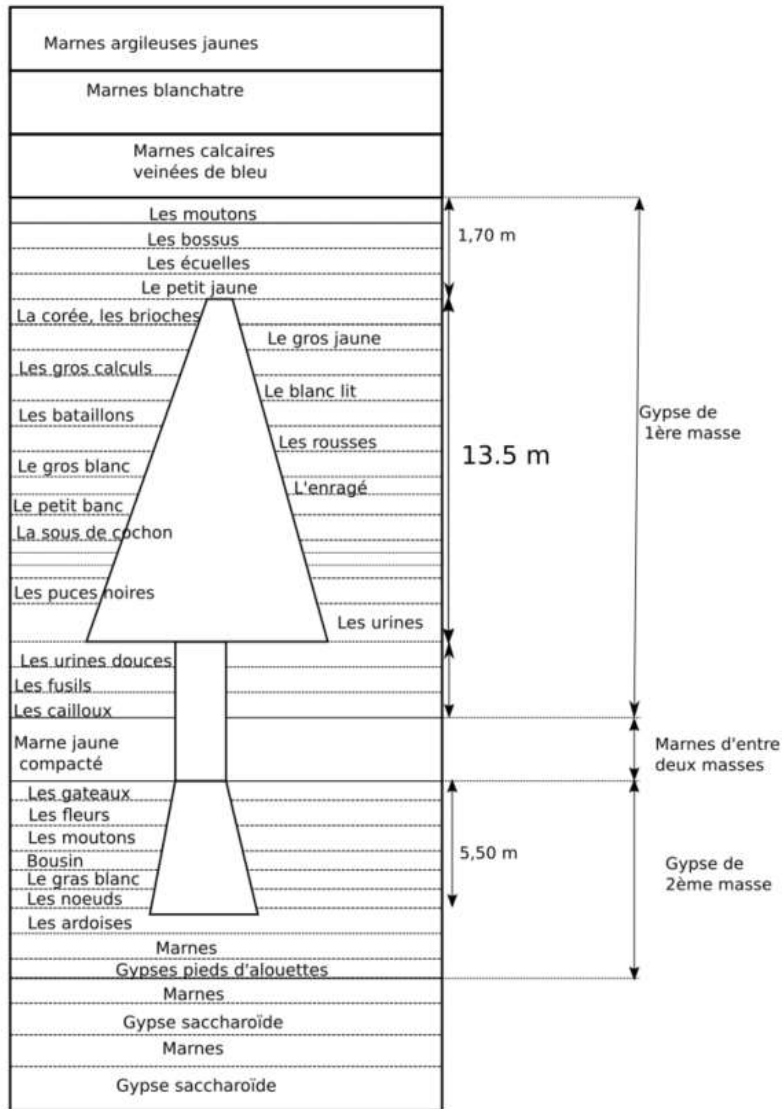


Figure 208 Coupe schématique de l'exploitation des carrières de gypse. Source : (Du Mouza, 1975)

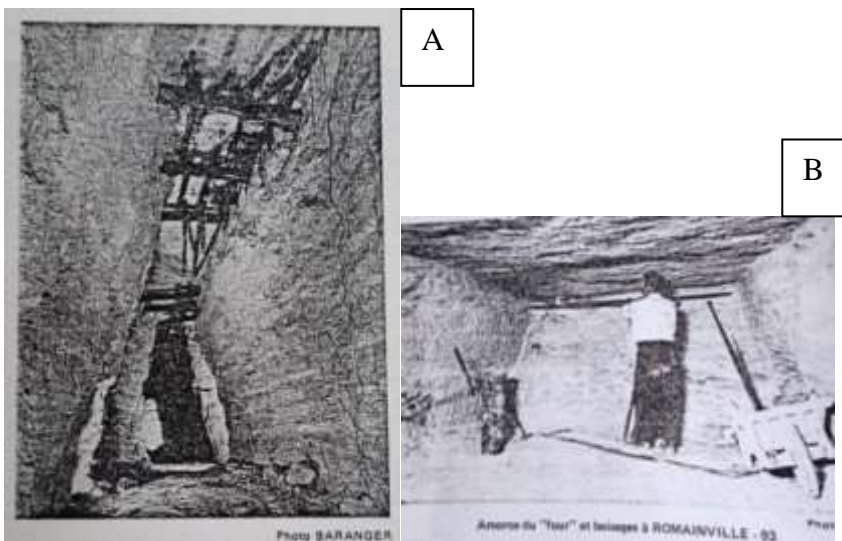


Figure 209 A : Mise en place des boisages. B : boisements dans une carrière de gypse. Source (Vachat, 1982)

### b) Aléa cavité dans les exploitations de gypse

Le risque d'effondrement dans les carrières de gypse parisien peut être divisé en 2 types : le cas de fontis/dolines qui est le plus couramment rencontré et le cas d'effondrement généralisé plus rare (4 cas recensés). Les effondrements généralisés dans le gypse correspondent à des événements recouvrant plusieurs centaines de mètres carrés voire l'hectare. Le fontis s'initie par une première chute du toit de recouvrement pour former un cône d'effondrement. Ce cône va ensuite évoluer progressivement par effondrement successif jusqu'à la surface. Il est alors désigné comme un fontis percé (voir glossaire). Ils peuvent être déclenchés par deux types de rupture (Caudron, 2007; Yaghkob, 2017) :

- Soit par rupture du toit : il s'agit alors d'une rupture cisailante qui a préférentiellement lieu au centre d'un carrefour entre des piliers, les piliers reprenant moins ces points de charge.
- Soit par rupture d'un pilier : il s'agit alors d'une rupture en compression qui peut être causée par la fatigue du pilier ou par son altération (dissolution, gonflement du plancher...).

La détermination du percement d'un fontis a fait l'objet de nombreux travaux avec différentes approches, qu'elles soient empiriques (Vachat, 1982), expérimentales (Caudron, 2007), analytiques (Tritsch et al., 2004) ou numériques (Yaghkob, 2017). Le percement d'un fontis nécessite la prise en compte d'un nombre important de facteurs comme l'épaisseur de recouvrement, la nature des terrains, la hauteur de la carrière, ou la fissuration. Le fontis peut en effet affecter ou non la surface soit par un effet de tassement, soit par un effondrement (Vachat, 1982; Caudron, 2007). L'un des principaux paramètres de l'approche empirique est la relation prenant en compte les paramètres géométriques du fontis. Un des principaux critères à prendre en compte dans le phénomène de fontis est le ratio entre la hauteur de couverture (h) et la hauteur du vide (ouverture) (H), soit  $H/h$ , auquel on ajoute un coefficient de foisonnement (voir glossaire) ( $C_f$ ), tel que (éqI.A.4) :

$$\frac{h}{H} = C_f \cdot h \quad \text{éqI.A.4}$$

D'après les travaux de Vachat (1982), qui a établi une liste des événements connus dans le gypse des années 1930 à 1980, ce ratio va de 1 à 8 dans le gypse parisien (Figure 210). Les événements survenant à des ratios supérieurs sont plus rares car les conditions géologiques d'un recouvrement important sont moins souvent présentes et que l'augmentation du recouvrement favorise l'atténuation du fontis via la décompression des terrains, ce qui limite ainsi son effet en surface. Avec l'évolution du fontis, les terrains mobilisés se retrouvent décompactés et voient ainsi leur volume augmenter pour une même masse de matériau. De fait lors de sa remontée, la perturbation générée par le fontis tend à s'atténuer.

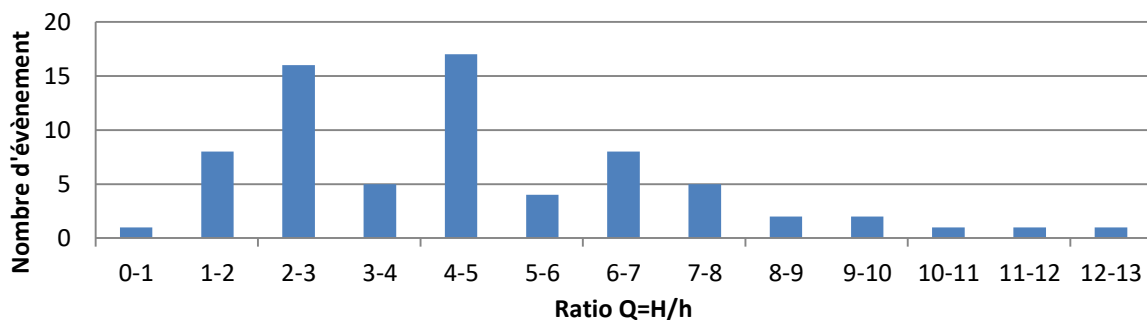


Figure 210 Histogramme des coefficients de recouvrement lors des remontées de fontis dans le gypse. Source (Vachat, 1982)

## 2) Spéléogénèse dans le gypse

### a) Localisation du phénomène

Historiquement, le karst désigne les reliefs de surface (exokarst) et souterrain (endokarst) issus de la dissolution des carbonates (Gilli, 2011) (Figure 211). Ce terme spécifique des milieux carbonatés s'est étendu avec le temps à l'ensemble des modèles de dissolution quel que soit le substrat où se déroule le processus de dissolution. Il est ainsi plus exact, toujours selon Gilli de parler de parakarst, pour des substrats autres que les carbonates.

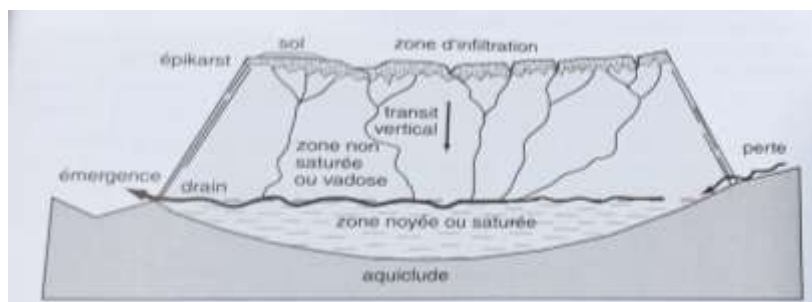


Figure 211 Schéma de l'organisation d'un système karstique. Source Gilli, (2011)

### b) Le parakarst du gypse

#### i. Le parakarst du gypse dans le monde

L'ensemble des zones riches en gypse semblent soumises à la formation de structure karstique. Klimchouk et al., (1996a) ont ainsi recensé plus de 35 pays soumis à cet aléa. Les principales formes exokarstiques sont les dolines et les gouffres (Nicod, 1976; Klimchouk, 1996e; Bigot, 2010) de quelques décimètres à plusieurs décimètres. Cette sensibilité à la karstification est causée par la cinétique de dissolution du gypse. Les faibles propriétés mécaniques des évaporites ont tendance à limiter le développement des galeries souterraines à quelques centaines de mètres. Le plus souvent, les conduits karstiques sont peu développés et remplis par des effondrements (Gilli, 2011). Ces faibles développements sont induits par la forte érodabilité du gypse et par ses propriétés mécaniques.

Le phénomène de parakarstification peut être naturel ou se déclencher à proximité de réseaux anthropiques qui peuvent induire une évolution rapide des matériaux gypseux en cas de fuite de conduite ou de pompage par exemple. Dans certaines configurations (recouvrement imperméable...), les galeries peuvent se développer et être préservées sur des surfaces de plusieurs kilomètres (Klimchouk et al., 1996c).

Les karsts gypseux peuvent non seulement induire un risque d'effondrement mais également constituer un risque pour la qualité des eaux. Ces milieux constituent en effet assez souvent des zones de captage d'eau pour l'agriculture ou l'alimentation en eau potable humaine. La perturbation des flux via des opérations anthropiques peut ainsi conduire à des augmentations de concentrations en sulfate rendant l'eau non potable, induisant un risque de salinisation du sol ou encore d'épuisement de la ressource en eau (Paukštys et al., 1999)

#### ii. Les parakarsts gypseux en France

En France, les principales zones de parakarstification dans le gypse sont localisées dans les couches triasiques (Julian and Nicod, 1990; Nicod, 1976, 1993; Chardon and Nicod, 1996; Rivet et al., 2012; Marçot and Thiebaud, 2018) et plus rarement dans les strates Cénozoïques

## ANNEXE

d'Ile-de-France (Toulemont, 1970, 1981, 1986; Bigot, 2010). C'est d'ailleurs dans les terrains triasiques de Provence et des Alpes que se localisent la majorité des phénomènes recensés (

La plus forte concentration de ces aléas dans le sud-est est due comme énoncé aux propriétés du gypse avec une solubilité de 2g/L à 20°C et à ses propriétés mécaniques (plastique...). Ces désordres sont également liés à un contexte géomorphologique qui favorise leur apparition. Les importants bouleversements tectoniques de l'orogénèse alpine par exemple ont induit la formation de nappe de charriage, de faille et de plissement qui ont conduit à des remaniements des masses gypseuses. Ces masses se sont ainsi déplacées dans les failles et les fissures, ou ont été mises en relief... En contact avec l'atmosphère, les masses gypseuses étaient facilement accessibles aux écoulements ce qui provoque la diminution de leurs propriétés mécaniques déjà faibles. Les modelés exokarstiques les plus présents dans le gypse sont les dolines avec les traces d'effondrement en résultant. Ces effondrements d'abord épars peuvent conduire à un effondrement généralisé sur des surfaces importantes, conduisant à la formation d'ouvala et de poljé (voir glossaire). Parmi les réseaux endokarstiques connus en France, un seul dépasse les 1000 m de développement (Tableau 58) : il s'agit du réseau Denis-Paris qui a été découvert par recoupement avec une carrière. Le réseau se localise dans la première masse du gypse priabonien et ne dispose pas d'une structure hiérarchisée. Il se serait formé à partir de remontée hypogénique (voir glossaire) recoupant la fissuration du massif (Bigot, 2010).

**Tableau 58 Développement des principaux réseaux karstiques dans le gypse français - Cavités du gypse de plus de 200 m de développement. (Bigot, 2010)-**

Nom de la cavité	Département	Dév. (m)
Réseau Denis Paris	Béthmont-la-Forêt, Val-d'Oise	≈ 2950
Grotte de Champ-Bernard	Granier, Savoie	525
Grotte de Vaujourn	Vaujourn, Seine-Saint-Denis	≈ 500
Balme de Sardières	Sollières-Sardières, Savoie	405
Traversée de Gébroulaz	Les Allues, Savoie	325
Grotte de Suès	Sospel, Alpes-Maritimes	≈ 300
Fontaine des Iscles	Lantosque, Alpes-Maritimes	250
Grotte-émergence des Planes	Pralognan, Savoie	210
Grotte du Moulin d'Orgemont	Argenteuil, Val-d'Oise	≈ 200

Ces conduits karstiques en région parisienne se sont formés suite aux circulations des niveaux aquifères entraînant une dissolution régressive des couches de gypse depuis leurs extrémités et sont aujourd'hui peu actives. Ainsi le bord de ces couches est de type ruiniforme (voir glossaire) et se compose de plusieurs faciès de substitution (silice, dolomite) (Toulemont, 1981, 1982). Les parakarstifications se sont développées essentiellement à partir de la fracturation des massifs permettant de canaliser les écoulements. La réduction de l'activité karstique actuellement pourrait être due soit à la réduction des pompages avec la désindustrialisation entraînant une réduction des vitesses d'écoulement ce qui permet de freiner le renouvellement de l'eau à proximité des masses gypseuses soit au recouvrement par des limons quaternaires qui génèrent une couverture étanche et protectrice (Thorin, 1984; Toulemont, 1987).

La formation des cavités naturelles dans le gypse est principalement gouvernée par 2 processus distincts. Ces deux processus peuvent néanmoins opérer dans une même cavité en fonction de son évolution. Il s'agit de la spéléogénèse « phréatique » issue de l'infiltration des eaux de surface et de la spéléogénèse « artésienne » issue de phénomènes de remontées de nappes (Klimchouk, 1996c; Tisato et al., 2012).

### c) Spéléogénèse par infiltration (phréatique)

Ce type de formation est le plus communément décrit : il s'agit d'une infiltration plus rapide de l'eau via le réseau de fissuration que dans le reste de la strate encaissante. Ce type de karstification par infiltration est appelé « épikarst » (Gilli, 2011). Lors de cette infiltration, les fissures vont progressivement s'élargir sous l'effet de la dissolution. Le développement du réseau de fissure suit la fissuration qui est généralement bien connectée. Le principal modelé obtenu est la formation de « doline ». Il s'agit de vides verticaux se formant par l'élargissement et le drainage vertical d'un conduit. C'est cette fissure qui déterminera la structure des conduits le plus souvent verticaux et plus rarement horizontaux.

La dissolution s'initie ainsi le long d'une proto-fissure ou d'un conduit connecté. Dans ces zones, l'eau va circuler lentement en conditions laminares. La saturation rapide du gypse favorise ainsi la dissolution à proximité du point d'infiltration qui va progressivement s'évaser, permettant ainsi au fluide de pénétrer plus en profondeur et ensuite d'élargir la fissure (Figure 212). Une fois le conduit suffisamment large, l'écoulement entrera en régime turbulent et continuera de dissoudre la masse gypseuse. Ce type de phénomène peut être comparé à celui appelé « whormhole » (Partie B.III)

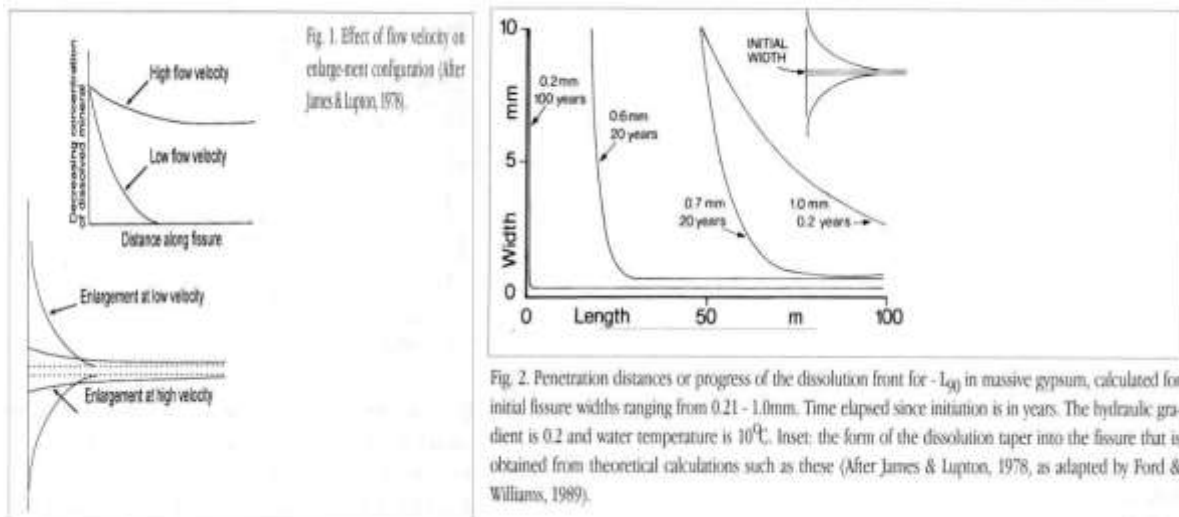


Figure 212 Effet de la vitesse et évolution d'une fissure dans le gypse. D'après (James and Lupton, 1978)

### d) Spéléogénèse en conditions confinées (artésien)

La spéléogénèse en conditions confinées repose sur le principe de l'artésianisme (voir glossaire). Lorsqu'un aquifère en profondeur est confiné, sa charge hydraulique augmente. Lorsqu'il rencontre une zone de fissure dans son toit, l'eau va pouvoir s'y infiltrer par capillarité et sous l'effet de la pression. Si le fluide est sous-saturé, il en résulte une dissolution progressive ascendante. Ce toit peut servir d'aquiclude (voir glossaire) à un aquifère supérieur comme dans le cas des parakarts ukrainiens (Klimchouk, 1996a, d; Klimchouk and Aksem, 2005; Klimchouk and Andreychouk, 2017). Une fois atteint l'aquifère supérieur, une communication peut s'initier entre les deux aquifères et accélérer le processus de dissolution (figure 213 A et B). Un autre cas possible est la simple dissolution du toit sous l'action de l'aquifère sous-saturé (figure 213C). La dissolution par remontée de nappe est appelée « hypogénique » (Klimchouk, 1996c; Vigna et al., 2010; Bigot, 2010; Tisato et al., 2012). Elle se reconnaît par la formation de conduits en forme de V, des traces de

dissolution en toit et de faibles quantités de sédiments déposés dans ce système fermé (Bigot, 2010).

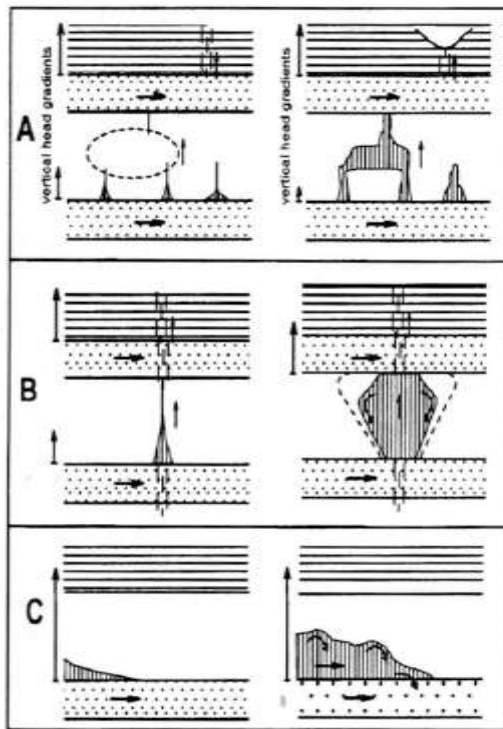


Fig. 3. Initiation (left) and development (right) of conduits and voids under artesian conditions. A = along common fissures; B = along a major tectonic fault; C = along a contact with an adjacent aquifer.

figure 213 Schéma de formation d'un parakarst dans un milieu gypseux en condition artésienne. (A) le long de fissure, (B) le long d'une faille importante, (C) par dissolution de contact. Source (Klimchouk, 1996c)

#### e) Estimation des taux de régression dans le gypse

Le taux de régression correspond à la vitesse de diminution d'une épaisseur de roche exprimée par unité de temps ( $\text{mm}\cdot\text{an}^{-1}$ ). Sa détermination est complexe car fortement dépendante des conditions expérimentales considérées (exposition aux intempéries, ruissellements...) et de la zone étudiée (surface, cavité, ...) (Figure 58). Dans le cas de mesure sur un terrain naturel en place, la végétation peut également avoir un rôle de protection en freinant les eaux météoriques (Rovera, 1993). Toutefois le taux de régression reste globalement plus important dans les rivières que dans les autres sites de mesures. Cela est dû au contexte dynamique avec une eau venant éroder les berges en plus de la dissolution chimique du matériau. **Dans le cas d'un terrain nu soumis aux intempéries, des taux de 0 à 50 mm par année sont communément obtenus.** La variabilité peut venir pour partie des volumes d'eaux, de la topographie (inclinaison, orientation...) des sites.

Lorsqu'aucun accès au site d'étude n'est possible, une méthode empirique est couramment appliquée dans la littérature (Dellery and Durozoy, 1975; Toulemont, 1981; Thorin, 1984; Rovera, 1993). Elle consiste à estimer à partir des propriétés volumiques du gypse, de la charge en calcium et en sulfates d'une source et de son débit, le volume annuel de gypse dissous (éqI.A.5). Cette méthode ne permet qu'une estimation et sans géométrie associée.

$$\tau = \frac{Q X}{\rho S} \quad \text{éqI.A.5}$$

Où Q : débit ( $\text{m}^3\cdot\text{an}^{-1}$ ), S : surface drainée ( $\text{m}^2$ ),  $\rho$  : masse volumique ( $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ ), X : minéralisation ( $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ ),  $\tau$  : taux de dissolution ou d'érosion ( $\text{m}^3\cdot\text{km}^{-2}\cdot\text{an}^{-1}$ ).



**Annexe 1.D : Tableau donnant les calculs pour la détermination de la perméabilité en fonction de la géométrie d'après le coefficient de Kozeny Carman**

Section	Circulaire	Triangle	Carrée	Rectangle
K	$\frac{\phi}{c4\pi(1-\phi)^2\tau^2} S$	$\frac{\phi}{c12\sqrt{3}(1-\phi)^2\tau^2} S$	$\frac{\phi}{c16(1-\phi)^2\tau^2} S$	$\frac{\phi}{c16(1-\phi)^2\tau^2} S$
Section	Ellipse 10	Ellipse 20	Ellipse 30	Ellipse 40
K	$\frac{\phi}{c20,2\pi(1-\phi)^2\tau^2} S$	$\frac{\phi}{c40,1\pi(1-\phi)^2\tau^2} S$	$\frac{\phi}{c60,06\pi(1-\phi)^2\tau^2} S$	$\frac{\phi}{c80,05\pi(1-\phi)^2\tau^2} S$

**Annexe 1.E : Interaction chimique du modèle HC de Aguila .2022****Tableau 1.** Réactions et constantes d'équilibre pour les réactions de complexation aqueuse et de dissolution/précipitation minérale à 25 °C considérées dans le modèle de transport réactif 2-D (adapté de [81,83]).

Complexes aqueux		Log K (25 °C)
	$\text{OH}^- + \text{H}^+ \rightleftharpoons \text{H}_2\text{O}$	13.9951
	$\text{CaSO}_4(\text{aq}) \rightleftharpoons \text{Ca}^{2+} + \text{SO}_4^{2-}$	-2.1111
	$\text{CaHCO}_3^+ \rightleftharpoons \text{Ca}^{2+} + \text{HCO}_3^-$	-1.0467
	$\text{CaCO}_3(\text{aq}) + \text{H}^+ \rightleftharpoons \text{Ca}^{2+} + \text{HCO}_3^-$	7.0017
	$\text{CaCl}^+ \rightleftharpoons \text{Ca}^{2+} + \text{Cl}^-$	0.6956
	$\text{CaH}_3\text{SiO}_4^+ + \text{H}^+ \rightleftharpoons \text{Ca}^{2+} + \text{SiO}_2(\text{aq}) + 2\text{H}_2\text{O}$	8.7916
	$\text{CaOH}^+ + \text{H}^+ \rightleftharpoons \text{Ca}^{2+} + \text{H}_2\text{O}$	12.8500
	$\text{CaCl}_2(\text{aq}) \rightleftharpoons \text{Ca}^{2+} + 2\text{Cl}^-$	0.6436
	$\text{CaH}_2\text{SiO}_4(\text{aq}) + 2\text{H}^+ \rightleftharpoons \text{Ca}^{2+} + \text{SiO}_2(\text{aq}) + 2\text{H}_2\text{O}$	18.5616
	$\text{Ca}(\text{H}_3\text{SiO}_4)_2(\text{aq}) + 2\text{H}^+ \rightleftharpoons \text{Ca}^{2+} + 2\text{SiO}_2(\text{aq}) + 4\text{H}_2\text{O}$	15.0532
	$\text{MgCl}^+ \rightleftharpoons \text{Cl}^- + \text{Mg}^{2+}$	0.1349
	$\text{NaCl}(\text{aq}) \rightleftharpoons \text{Cl}^- + \text{Na}^+$	0.7770
	$\text{KCl}(\text{aq}) \rightleftharpoons \text{Cl}^- + \text{K}^+$	1.4946
	$\text{HCl}(\text{aq}) \rightleftharpoons \text{Cl}^- + \text{H}^+$	0.6700
	$\text{CO}_2(\text{aq}) + \text{H}_2\text{O} \rightleftharpoons \text{H}^+ + \text{HCO}_3^-$	-6.3447
	$\text{MgHCO}_3^+ \rightleftharpoons \text{Mg}^{2+} + \text{HCO}_3^-$	-1.0357
	$\text{NaHCO}_3(\text{aq}) \rightleftharpoons \text{Na}^+ + \text{HCO}_3^-$	-0.1541
	$\text{CO}_3^{2-} + \text{H}^+ \rightleftharpoons \text{HCO}_3^-$	10.3288
	$\text{MgCO}_3(\text{aq}) \rightleftharpoons \text{CO}_3^{2-} + \text{Mg}^{2+}$	-2.9789
	$\text{NaCO}_3^- \rightleftharpoons \text{Na}^+ + \text{CO}_3^{2-}$	-0.5144
	$\text{KSO}_4^- \rightleftharpoons \text{K}^+ + \text{SO}_4^{2-}$	-0.8796
	$\text{KOH}(\text{aq}) + \text{H}^+ \rightleftharpoons \text{K}^+ + \text{H}_2\text{O}$	14.4600
	$\text{KHSO}_4(\text{aq}) \rightleftharpoons \text{K}^+ + \text{H}^+ + \text{SO}_4^{2-}$	-0.8136
	$\text{MgSO}_4(\text{aq}) \rightleftharpoons \text{Mg}^{2+} + \text{SO}_4^{2-}$	-2.4117
	$\text{MgH}_3\text{SiO}_4^+ + \text{H}^+ \rightleftharpoons \text{Mg}^{2+} + \text{SiO}_2(\text{aq}) + 2\text{H}_2\text{O}$	8.5416
	$\text{MgH}_2\text{SiO}_4(\text{aq}) + 2\text{H}^+ \rightleftharpoons \text{Mg}^{2+} + \text{SiO}_2(\text{aq}) + 2\text{H}_2\text{O}$	17.4816
	$\text{Mg}(\text{H}_3\text{SiO}_4)_2(\text{aq}) + 2\text{H}^+ \rightleftharpoons \text{Mg}^{2+} + 2\text{SiO}_2(\text{aq}) + 4\text{H}_2\text{O}$	13.7232
	$\text{NaSO}_4^- \rightleftharpoons \text{Na}^+ + \text{SO}_4^{2-}$	-0.8200
	$\text{NaH}_3\text{SiO}_4(\text{aq}) + \text{H}^+ \rightleftharpoons \text{Na}^+ + \text{SiO}_2(\text{aq}) + 2\text{H}_2\text{O}$	8.6616
	$\text{NaOH}(\text{aq}) + \text{H}^+ \rightleftharpoons \text{Na}^+ + \text{H}_2\text{O}$	14.1800
	$\text{HSO}_4^- \rightleftharpoons \text{H}^+ + \text{SO}_4^{2-}$	-1.9791
	$\text{H}_6(\text{H}_2\text{SiO}_4)^{42-} + 2\text{H}^+ \rightleftharpoons 4\text{SiO}_2(\text{aq}) + 8\text{H}_2\text{O}$	13.4464
	$\text{HSiO}_3^- + \text{H}^+ \rightleftharpoons \text{SiO}_2(\text{aq}) + \text{H}_2\text{O}$	9.9525
	$\text{H}_2\text{SiO}_4^{2-} + 2\text{H}^+ \rightleftharpoons \text{SiO}_2(\text{aq}) + \text{H}_2\text{O}$	22.9116
	$\text{H}_4(\text{H}_2\text{SiO}_4)^{44-} + 4\text{H}^+ \rightleftharpoons 4\text{SiO}_2(\text{aq}) + 8\text{H}_2\text{O}$	35.7464
	$\text{HSO}_4^- \rightleftharpoons \text{H}^+ + \text{SO}_4^{2-}$	-1.9870
Minéraux		Log K (25 °C)
Gypse	$\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}(\text{s}) \rightleftharpoons \text{Ca}^{2+} + \text{SO}_4^{2-} + 2\text{H}_2\text{O}$	-4.4823
Magnésite	$\text{MgCO}_3(\text{s}) + \text{H}^+ \rightleftharpoons \text{Mg}^{2+} + \text{HCO}_3^-$	2.2936
Calcédoine	$\text{SiO}_2(\text{s}) \rightleftharpoons \text{SiO}_2(\text{aq})$	-3.7281
Calcite	$\text{CaCO}_3(\text{s}) + \text{H}^+ \rightleftharpoons \text{Ca}^{2+} + \text{HCO}_3^-$	1.8487
Bloedite	$\text{Na}_2\text{Mg}(\text{SO}_4)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}(\text{s}) \rightleftharpoons \text{Mg}^{2+} + 2\text{Na}^+ + 2\text{SO}_4^{2-} + 4\text{H}_2\text{O}$	-2.4777
Glauberite	$\text{Na}_2\text{Ca}(\text{SO}_4)_2(\text{s}) \rightleftharpoons \text{Ca}^{2+} + 2\text{Na}^+ + 2\text{SO}_4^{2-}$	5.4690
Thenardite	$\text{Na}_2\text{SO}_4(\text{s}) \rightleftharpoons 2\text{Na}^+ + \text{SO}_4^{2-}$	-0.3091

II. Annexes du chapitre 2

**Annexe 2.A : Sondage BSS002BREA**

L'AMBIENT ENDOGÈNE - GEMMELLÉ EN PÉRIODES  
Reconnaissance d'un site de gypse à lacer (Hautes Alpes).

ESCO. No. 10 58 m4      08936X0089      PLATRIERE      SONDAGE 9A

Tube	Châssis	Jours	Profondeur	Profondeur	Terrain	Corrosion	Observations
1	NEVEZ 2137	15.05.67	1	0	Gypse cristallisé sans fissures avec passages d'argile marbrée.		- Sondage incliné à 45° sous l'horizontale - Direction Sud (180° avec azimut géomagnétique)  - Note sur l'abandon du sondage - Sondage Ø 86 carottier double, couronné à carbure, de 0,00 à 3,35. (Dépense d'eau jusqu'à 1,70 m : en perte d'eau totale de 1,70 m à 3,35 m) - Alésage H2 de 0,00 à 3,35 m. - Sondage carottier double BQ de 3,35 m à 50,10 m. (En perte d'eau totale de 3,35 m à 50,10 m)
			2	0			
			3	0			
			4	0			
			5	0			
			6	0			
			7	0			
			8	0			
			9	0			
			10	0			
			11	0			
			12	0			
			13	0			
			14	0			
			15	0			
2	NEVEZ 2137	15.05.67	16	0	Gypse cristallisé sans fissures avec passages de marne grise.		
			17	0			
			18	0			
			19	0			
			20	0			
			21	0			
			22	0			
			23	0			
			24	0			
			25	0			
			26	0			
			27	0			
			28	0			
			29	0			
			30	0			
3	NEVEZ 2137	15.05.67	31	0	Gypse cristallisé sans fissures avec passages de marne.		
			32	0			
			33	0			
			34	0			
			35	0			
			36	0			
			37	0			
			38	0			
			39	0			
			40	0			
			41	0			
			42	0			
			43	0			
			44	0			
			45	0			
4	NEVEZ 2137	15.05.67	46	0	Gypse cristallisé sans fissures avec passages d'argile marbrée.		
			47	0			
			48	0			
			49	0			
			50	0			
			51	0			
			52	0			
			53	0			
			54	0			
			55	0			
			56	0			
			57	0			
			58	0			
			59	0			
			60	0			
5	NEVEZ 2137	15.05.67	61	0	Gypse cristallisé sans fissures avec passages de marne grise.		
			62	0			
			63	0			
			64	0			
			65	0			
			66	0			
			67	0			
			68	0			
			69	0			
			70	0			
			71	0			
			72	0			
			73	0			
			74	0			
			75	0			

Arrêt du sondage à 50,10 m.

ANNEXE

**Annexe 2.B : Sondage « PSM-AVP-SC4244 ».**

Altitude		Profondeur (m)		DESCRIPTION LITHOLOGIQUE NATURE DU TERRAIN	Stratigraphie	Niveau d'eau	Equipement	Outil	Tubage	Fluide	Echantillons	Date	Carottage (%)			RQD %										
													0	50	100	0	50	100								
33.71	37.73																									
20.41	41.00			Marne blanche à cailloutis calcaires	Marnes et Calcaissés		Coulis ciment de 28,00 à 80,00 m de profondeur	Carottier PQ diamètre 69 mm + Couronne diamant diamètre 120 mm		Forage à l'eau		06/03/2018	41,00													
20.21	41.30			Sable argileux beige blanchâtre																E17	42,00					
18.41	42.00			Marne avec nombreux cailloux de calcaire beige blanchâtre																						
18.41	43.00			Marne beige à cailloutis																						
14.71	46.70			Gypse saccharoïde fracturé en blocs, en plaquettes de 43,00 à 44,70 m, passage altéré grisâtre à 43,70 et 44,50 m et de 44,70 à 45,00 m et 46,40 à 46,70 m, passage de cailloux et cailloutis de gypse de 45,00 à 45,50 m																						
12.81	48.80			Marne beige blanchâtre																						
12.01	49.40			Gypse saccharoïde fracturé en blocs																						
10.91	50.50			Marne grisâtre fracturée et altérée, présence de gypse saccharoïde de 50,40 à 50,50 m																						
9.91	51.50			Blocs de gypse cristallisé gris clair																						
8.71	52.70			Gypse saccharoïde blanc très altéré en zone grisâtre et fracturé en blocs																						
8.01	53.40			Gypse saccharoïde, passage d'argile sépiolitique à 53,30 m																						
6.81	55.80			Marne beige grisâtre, passage d'argile sépiolitique noir de 54,80 à 54,90 m																						
4.01	57.40			Blocs de gypse et de calcaire																						
3.01	58.40			Alternance d'argile marneuse et de blocs calcaires beige-grisâtre																						
2.41	59.00			Blocs de gypse																						
2.10	59.31			Gypse blanc alabaître à inclusions de gypse de noir et cailloutis de gypse																						
1.54	59.87			Marne beige-grise à blocs calcaires et cailloutis calcaires																						
1.31	60.11			Gypse alabaître blanc																						

Logiciel JEAN LUTZ S.A. - www.jeantutz.fr

EXGTE 3.22

ANNEXE

**Annexe 2.C : Sondage RSB-AVP-SC04200fer de lance**

Altitude (m)	Profondeur (m)	DESCRIPTION LITHOLOGIQUE NATURE DU TERRAIN	Stratigraphie	Equipement	Niveau d'eau	Outil	Tubage	Fluide	Echantillon	Date	Carottage (%)
											0 50 100
77.82	0.30	Bitume	1.3 m	Tubo PVC Ø 80/90 mm plein + cimentation + bouche à clé ras du sol cimentée		Carottier traditionnel Ø 116 mm	Tubage PW Ø 139.7 mm		E11	01/06/2017	100
		Couche de forme									
76.62	1.30	Sable argileux marron à cailloux	Colluvions					Forage à feu	E12	01/06/2017	100
75.42	2.50	Sable argileux marron à cailloux et cailloutis									
74.72	3.20	Argile sableuse à sable argileux marron à cailloutis et quelques blocs									
73.92	4.00	Sable argileux beige à traces brunes à cailloux et cailloutis									
72.62	5.30	Argile sableuse brune à marron à cailloutis, cailloux et quelques blocs									
70.42	7.50	Sable argileux marron à beige à cailloutis, cailloux et quelques blocs	7.5 m	Massees et Marnes du Gypse			12.0 m	NEANT	E13	02/06/2017	100
69.52	8.40	Marne beige à blanchâtre									
68.62	9.40	Marne beige légèrement sableuse									
67.72	10.20	Marne indurée beige blanchâtre sur 20 cm, puis marne beige									
66.92	11.00	Marne légèrement sableuse beige blanchâtre à passée marron et à quelques cailloux et cailloutis en tête. Marnes plus argileuses en base									
66.12	11.80	Marne sableuse beige									
65.42	12.50	Marne beige blanchâtre à quelques traces ocre									
63.02	14.90	10 cm d'argile grise à traces noires puis marne beige verdâtre à blanchâtre à traces d'altération ocre et noires. Blocs calcaires entre 13 et 13.3 m et passée d'argile marron grise à 13.3 et 14.9 m									
62.92	15.10	Marne sableuse beige									
61.62	16.30	Marne blanchâtre indurée et farineuse. Passée d'argile brune de 15.8 à 16 m puis gypse massif.									
		Gypse saccharoïde jusque 17.3 m puis gypse massif									
59.22	17.70	10 cm de marne sableuse puis gypse cristallisé (fer de lance)									
59.52	18.40										
58.62	19.30	Gypse massif (10 cm de cristallisé en base)							E14		80
		Gypse saccharoïde beige avec passage de marne sableuse beige de 19.9 à 20,1 m. Au delà de 20,1 m : gypse cristallisé							E15		100

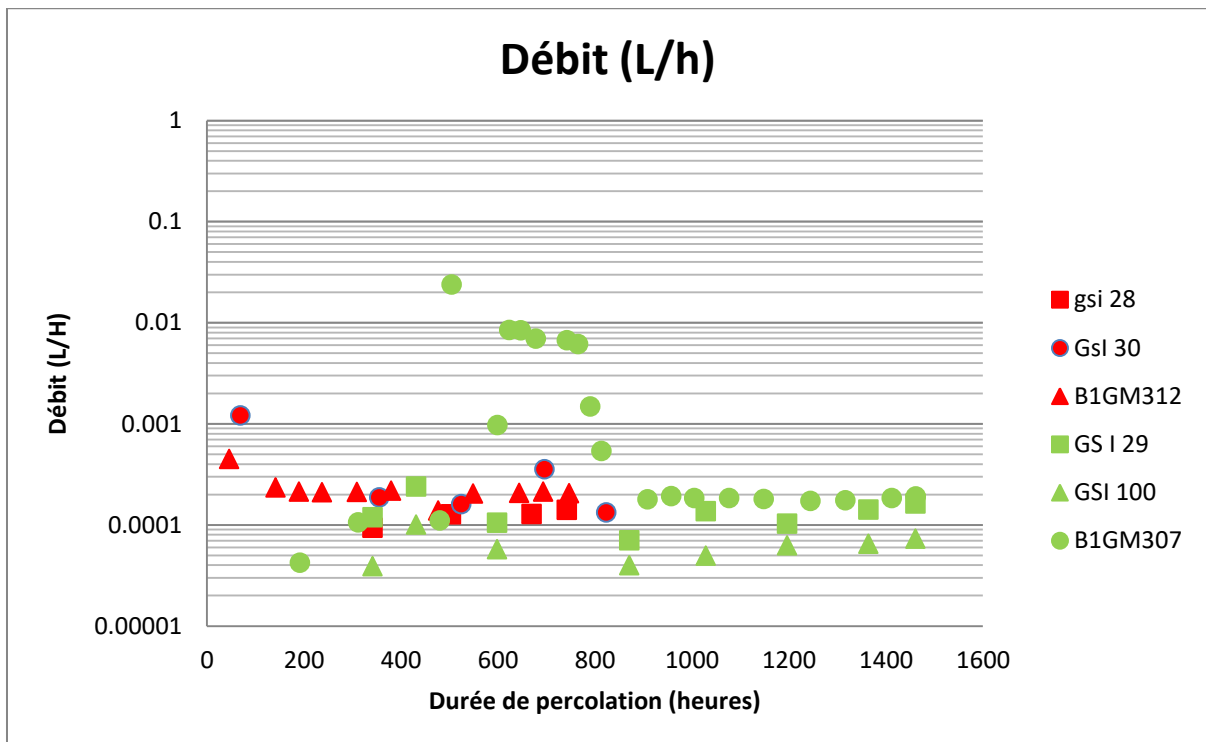
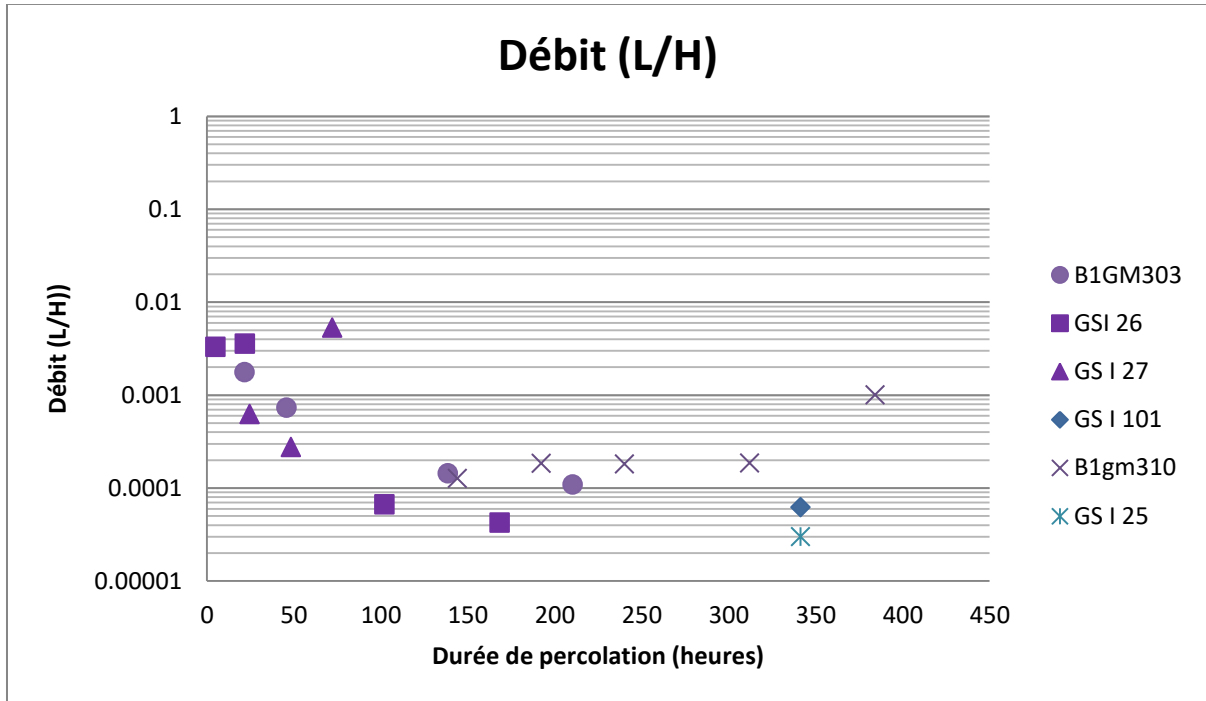
Logiciel JEAN LUTZ S.A. - www.jeanlutzsa.fr

EXGTE 2.30

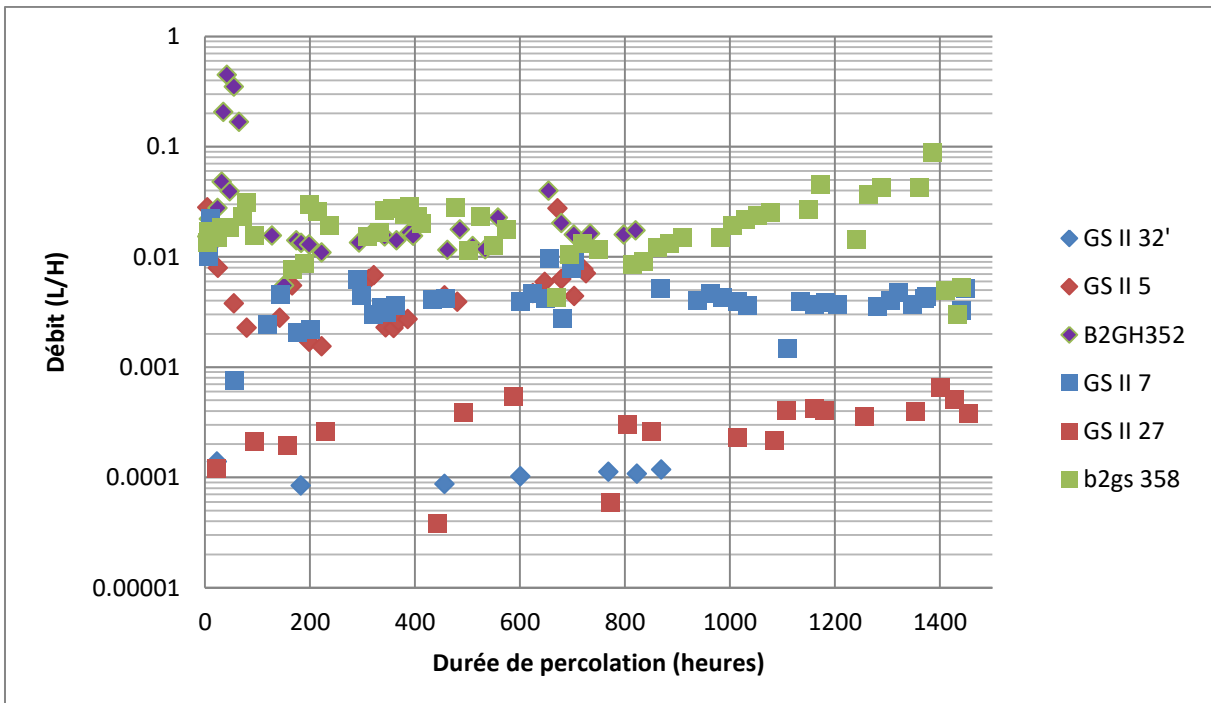
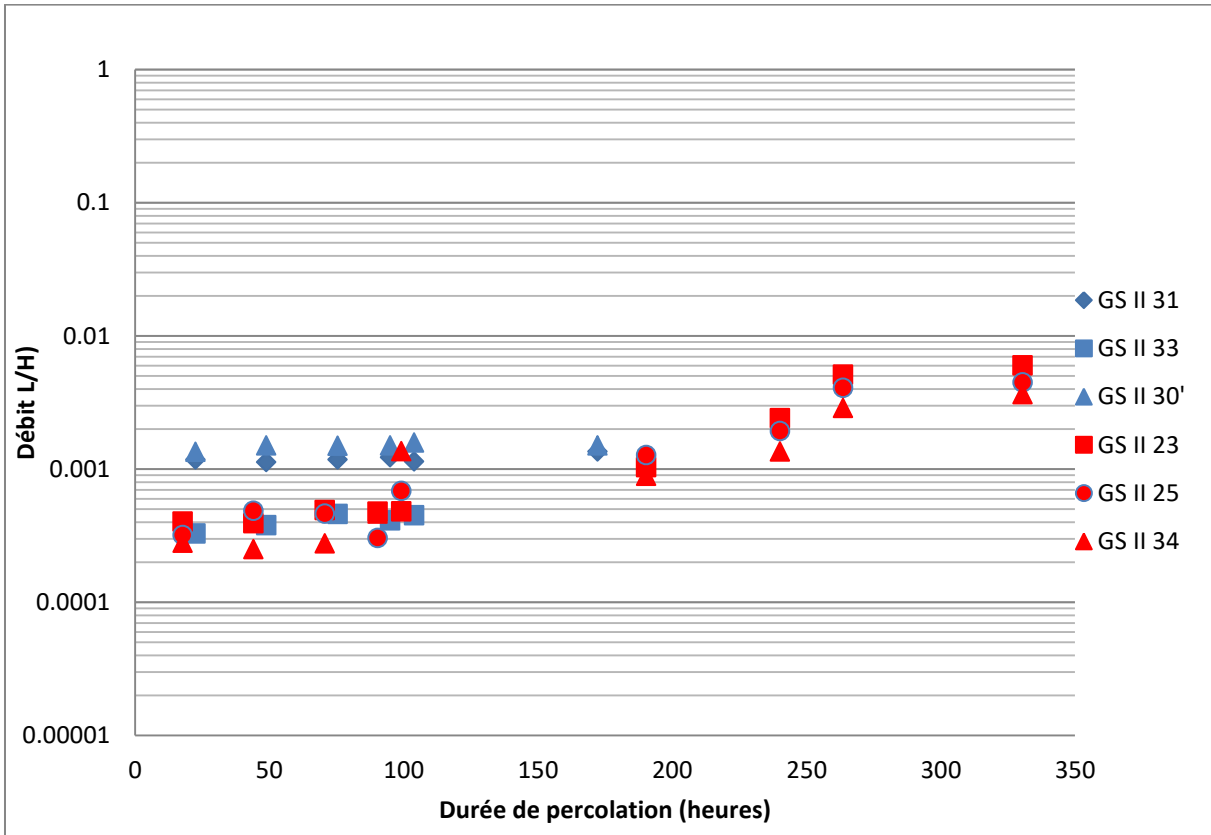
### III. Annexe Chapitre 3

#### Annexe 3.A débit des cellules de percolation

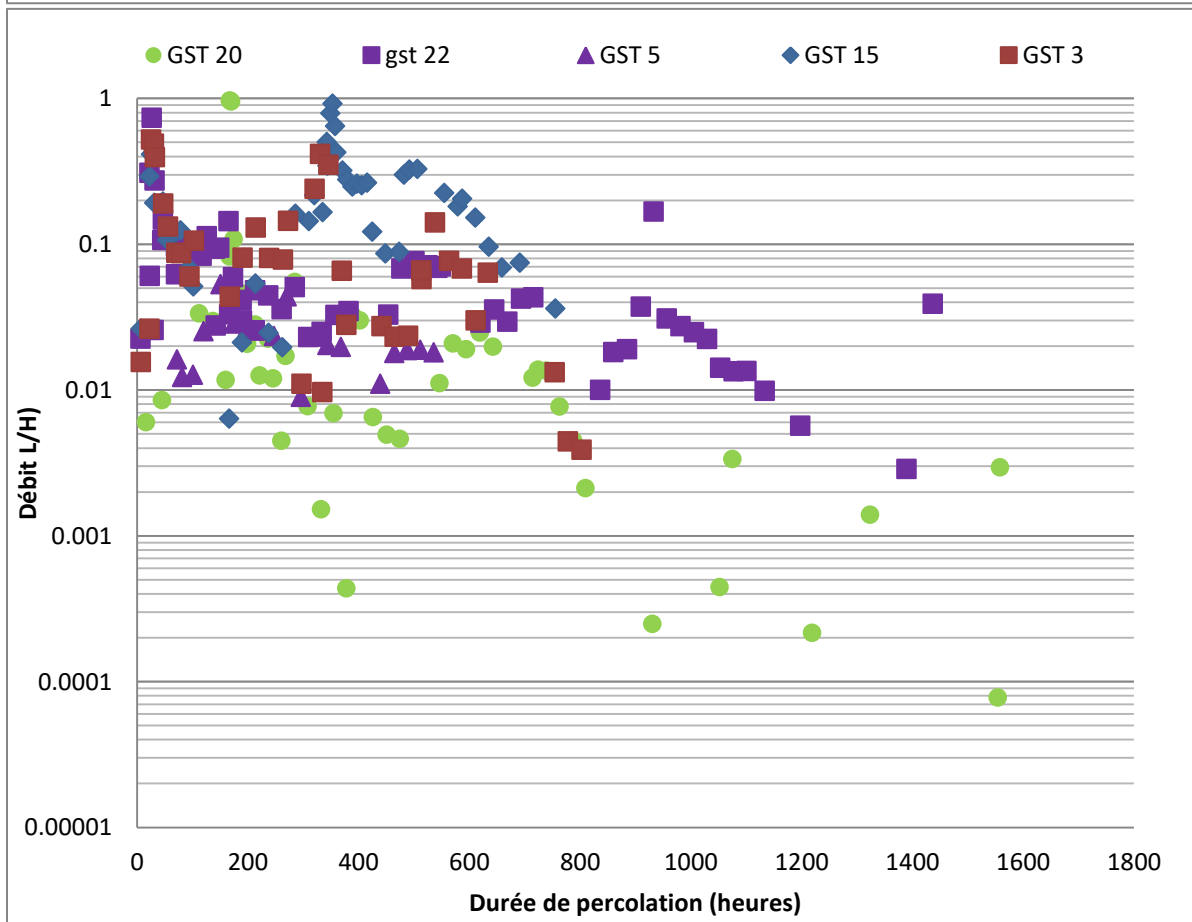
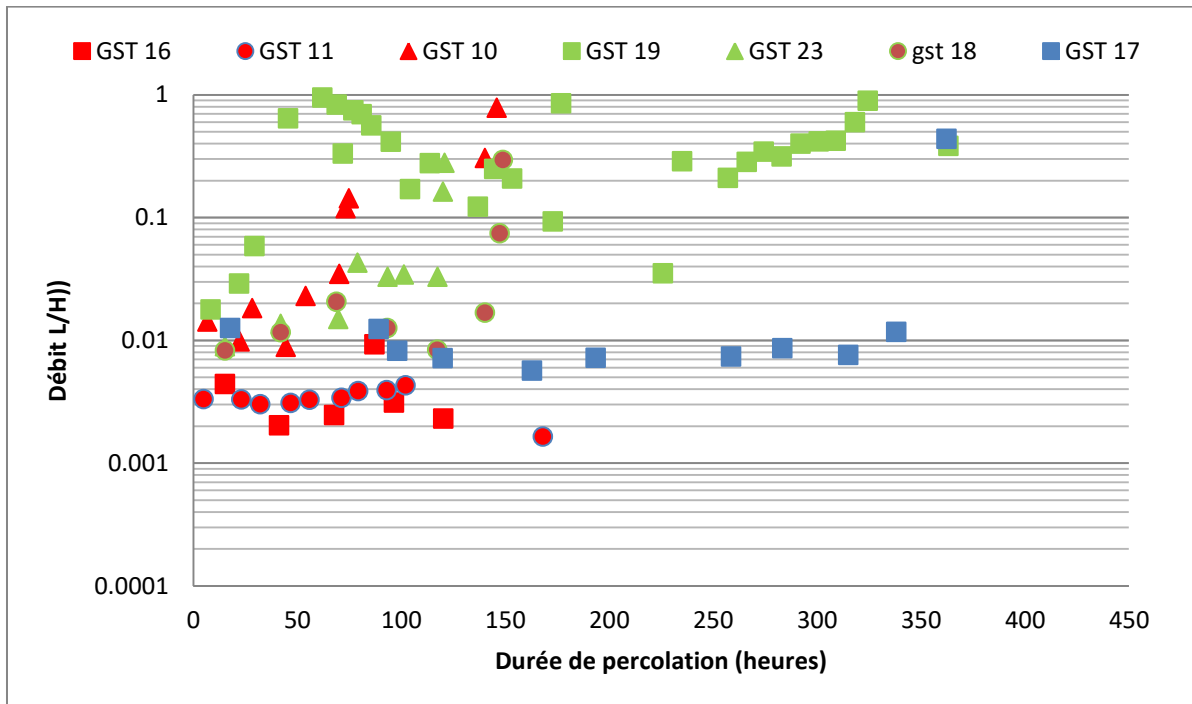
##### *1) Débit des éprouvettes de gypse matriciel pur lors de l'essai de percolation*



2) Débit des éprouvettes de gypse saccharoïde pur lors de l'essai de percolation



3) Débit des éprouvettes de gypse saccharoïde à interlits lors de l'essai de percolation





ANNEXE

**Annexe 3.B : Détermination des indices de continuités**

		1 semaine		2 semaines		1 mois		2 mois	
		valeurs	Var.	valeurs	Var.	valeurs	Var.	valeurs	Var.
Gypse matriciel	Vp (m/s)	2628 +/- 8	-72	3150 +/- 55	-363	2780 +/-26	-389	2998 +/- 47	-431
	Ic (%)	48,5 +/-7.2	-4,5	56,3 +/-12.4	-8.6	52,6 +/-8.4	-7.1	53.5 +/-16.7	-7.7
	Nt (%)	10,4 +/- 0,5	+0.8	9,4 +/- 1,7	+0.6	12,1 +/- 3,1	+0.1	10,0 +/- 3,5	+0.7
	N <sub>pore</sub> (%)	8,9	+0.4	7,9	+0.2	10,6	0.0	8,5	+0.3
	N <sub>fiss</sub> (%)	1,5	0.0	1,5	+0.3	1,5	+0.1	1,5	+0.3
Gypse saccharoïde pur	Vp (m/s)	3042 +/- 79	-614 +	3179 +/- 10	-474	2724 +/-5,3	-669	2948 +/- 16.7	-215
	Ic (%)	54.3 +/-2.5	-11.0	56.8 +/-1.4	-8.4	48.7 +/-8.1	-12.0	52.7 +/-0.5	-3.9
	Nt (%)	8,3 +/- 1,0	+0.4	8,1 +/- 0,5	+0.4	14,6 +/- 4,2	+5.1	13,2 +/- 2,9	+2.9
	N <sub>pore</sub> (%)	6,5	0.0	6,3	0.0	13,2	+3.5	11,8	+2.5
	N <sub>fiss</sub> (%)	1,8	+0.6	1,8	+0.6	1,4	+0.2	1,4	+ 0.1
à Gypse saccharoïde interlits	Vp (m/s)	2285 +/- 14	-319	2212 +/- 24	-468	1602 +/- 54	-1450	1889 +/- 34	-686
	Ic (%)	40.8 +/-3.3	-7.4	39.5 +/-3.9	-5.1	28.6 +/-4.5	-19.5	33.7 +/-16	-10.9
	Nt (%)	9,0 +/- 2,8	+1.2	8 ,4 +/- 1,1	+1.4	8,8 +/- 0,7	+1.6	9,2 +/- 3,0	+1.6
	N <sub>pore</sub> (%)	6,8	+0.9	6,1	+1.5	5,9	+1.0	6,2	+0.8
	N <sub>fiss</sub> (%)	2,2	+0.2	2,3	+0.1	2,9	+0.9	2,6	+0.4

**Annexe 3.C : Résultats de la porosimétrie par intrusion de mercure**

**1) Gypse matriciel**

	1 semaine						
	initiale	0 -1cm	1 -2 cm	2 -3 cm	3 - 4 cm	4 - 5 cm	5 - 8 cm
Porosité (Nhg) (%)	9.4	20.3	20.0	19.0	15.8	16.8	12.4
macroporosité	32.3	38.1	33.8	24.2	6.5	28.8	29.5
microporosité	19.6	28.5	28.0	27.0	15.2	23.9	28.6
nano porosité	48.1	33.5	38.2	48.8	78.3	47.3	41.9
Réseau de pore	bimodal	bimodal	bimodal	bimodal	bimodal	bimodal	bimodal
Rayon moyen (µm)	0.1 et 0.7	0,1 et 9	0,1 et 6	0,1 et 4	0,1 et 9	0,1 et 0,8	0,1 et 3
Rayon d'accès (µm)	0,5 et 0.03	2 et 0,02	1 et 0,01	1 et 0,01	1 et 0,02	9 et 0,015	0,9 0,025
Coefficient de dispersion	11.30	81.44	60.32	19.52	24.42	10.14	17.74

	2 semaines						
	initiale	0-1 cm	1-2 cm	2-3 cm	3-4 cm	4-5 cm	5-6 cm
Porosité (Nhg) (%)	9.4	9.5	15.6	8.9	10.3	12.7	12.1
macroporosité	32.3	29.4	32.0	40.2	31.3	30.7	31.3
microporosité	19.6	33.4	25.0	24.2	24.7	24.3	24.7
nano porosité	48.1	37.2	43.0	35.5	44.0	45.0	44.0
Réseau de pore	bimodal	bimodal	bimodal	bimodal	bimodal	bimodal	bimodal
Rayon moyen (µm)	0.1 et 0.7	0,1 et 2	0,1 et 4	0,1 et 1	0,1 et 1	0,1 et 1	0,1 et 1
Rayon d'accès (µm)	0,5 et 0.03	0,9 et 0,03	0,8 et 0,02	0,6 et 0,04	0,4 et 0,04	0,8 et 0,025	0,7 et 0,03
Coefficient de dispersion	11.30	22.2	30.7	25.1	11.3	15.8	6.5

## ANNEXE

	1 mois						
	initiale	0 - 1 cm	1 - 2 cm	2 -3 cm	3 - 4 cm	4 - 5 cm	5 - 7 cm
Porosité (Nhg) (%)	9.4	18,7	17,4	15,9	16,0	15,1	17,6
macroporosité	32.3	30.6	27.9	23.9	29.6	33.2	24.3
microporosité	19.6	33.7	28.2	31.1	32.0	30.4	29.7
nano porosité	48.1	35.7	43.9	45.0	38.4	36.5	46.0
Réseau de pore	bimodal	bimodal	bimodal	bimodal	bimodal	bimodal	bimodal
Rayon moyen ( $\mu\text{m}$ )	0.1 et 0.7	0,08 et 7	0,08 et 5	0,09 et 5	0,06 et 4	0,09 et 5	0,08 et 5
Rayon d'accès ( $\mu\text{m}$ )	0,5 et 0.03	1 et 0,03	0,9 et 0,02	0,9 et 0,02	1 et 0,02	0,9 et 0,02	2 et 0,02
Coefficient de dispersion	11.30	52.12	30.94	27.46	43.36	44.43	24.24

	2 mois					
	initiale	0 _ 1 cm	1 _ 2 cm	2 -3 cm	3 _ 4 cm	4 _ 6 cm
Porosité (Nhg) (%)	9.4	10.7	16.4	13.5	16.7	15.6
macroporosité	32.3	37.0	34.9	29.3	30.1	28.0
microporosité	19.6	17.7	22.1	22.2	26.4	25.4
nano porosité	48.1	45.3	43.0	48.4	43.4	46.6
Réseau de pore	bimodal	bimodal	bimodal	bimodal	bimodal	bimodal
Rayon moyen ( $\mu\text{m}$ )	0.1 et 0.7	0,1 et 45	0,07 et 2	0,08 et 1,8	0,08 et 1,6	0,04 et 3
Rayon d'accès ( $\mu\text{m}$ )	0.03	0 ,7 0,03	1 et 0,02	0,9 et 0,02	0,9 0,015	1 et 0,02
Coefficient de dispersion	11.30	17.79	34.43	4.92	22.05	34.17

## ANNEXE

## 2) Gypse saccharoïde pur

	1 semaine						
	initiale	0-1 cm	1-2 cm	2-3 cm	3-4 cm	4-5 cm	5-7 cm
Porosité (Nhg) (%)	12.40	14.20	8.50	8.90	9.10	8.50	11.80
macroporosité	69,0	41.1	33.2	45.7	43.3	37.0	46.2
microporosité	29,9	57.6	64.8	52.5	55.0	60.9	52.1
nano porosité	1,1	1.3	2.1	1.9	1.7	2.0	1.7
Réseau de pore	unimodal	unimodal	unimodal	unimodal	unimodal	unimodal	unimodal
Rayon moyen ( $\mu\text{m}$ )	8,5	10	6	7	7	7	10
Rayon d'accès ( $\mu\text{m}$ )	4,2	6	1,9	2,6	3	2	3,5
Coefficient de dispersion	1,6	1.84	1.48	2.00	2.00	1.74	2.05
	2 semaines						
	initiale	0-1 cm	1-2 cm	2-3 cm	3-4 cm		
Porosité (Nhg) (%)	12.40	15,6	8,5	14,2	10,4		
macroporosité	69,0	65.99	47.33	60.84	53.75		
microporosité	29,9	32.31	49.93	37.71	44.24		
nano porosité	1,1	1.69	2.74	1.45	2.01		
Réseau de pore	unimodal	unimodal	unimodal	unimodal	unimodal		
Rayon moyen ( $\mu\text{m}$ )	8,5	15	6	8	8		
Rayon d'accès ( $\mu\text{m}$ )	4,2	3	1	1,9	1		
Coefficient de dispersion	1,6	2.58	2.84	5.01	2.90		
	1 mois						
	initiale	0-1 cm	1-2 cm	2-3 cm	3-4 cm	4 - 5 cm	5 - 6 cm
Porosité (Nhg) (%)	12.40	21,2	19,5	18,8	19,4	18,1	17,6
macroporosité	69,0	70.08	28.72	71.58	68.48	74.21	58.27
microporosité	29,9	29.48	70.12	27.72	30.85	25.03	40.86
nano porosité	1,1	0.44	1.16	0.70	0.67	0.77	0.87
Réseau de pore	unimodal	unimodal	unimodal	unimodal	unimodal	unimodal	unimodal
Rayon moyen ( $\mu\text{m}$ )	8,5	18.00	20.00	18.00	18.00	18.00	13.00
Rayon d'accès ( $\mu\text{m}$ )	4,2	8.10	12.00	11.00	10.00	12.00	9.00
Coefficient de dispersion	1,6	1.42	1.12	0.81	1.22	0.93	1.36
	2 mois						
	initiale	0-1 cm	1-2 cm	2-3 cm	3-4 cm	4 - 5 cm	5 - 7 cm
Porosité (Nhg) (%)	12.40	15,9	14,3	17,3	18,6	15,3	10,4
macroporosité	69,0	46.57	38.15	36.25	53.36	34.77	46.97
microporosité	29,9	51.66	61.22	62.28	45.63	61.85	49.85
nano porosité	1,1	1.77	0.63	1.47	1.01	3.38	3.18
Réseau de pore	unimodal	bimodal	unimodal	unimodal	unimodal	unimodal	unimodal
Rayon moyen ( $\mu\text{m}$ )	8,5	30 et 58	12.00	10.00	17.00	8,5	8,5
Rayon d'accès ( $\mu\text{m}$ )	4,2	7	6	9	8	5	6,5
Coefficient de dispersion	1,6	16.78	16.77	0.87	0.91	0.82	0.00

ANNEXE

3) Gypse saccharoïde à interlits

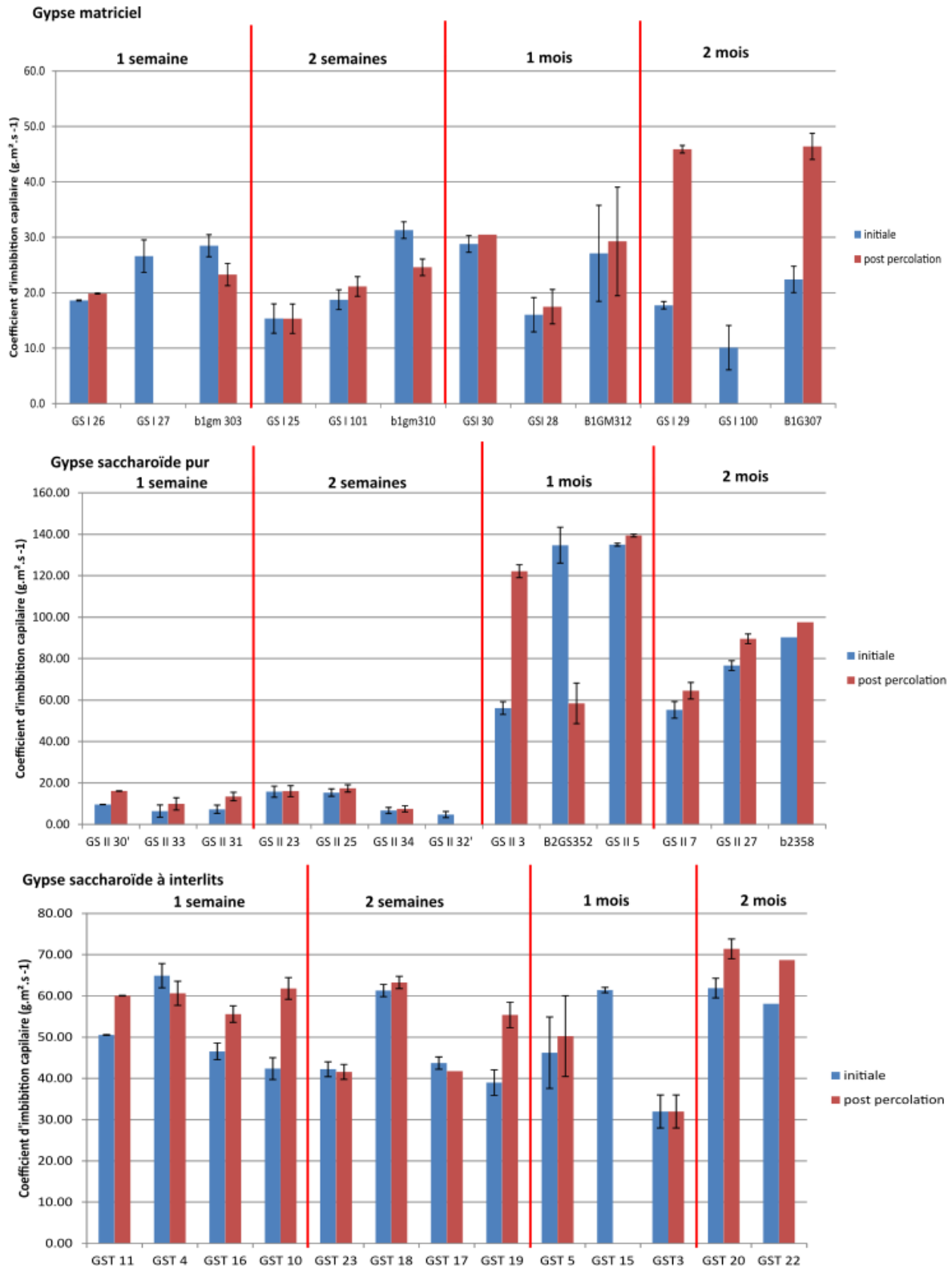
	1 semaine					
	initiale	0-1 cm	1-2 cm	2-3 cm	3-4 cm	4 - 6 cm
Porosité (Nhg) (%)	11,0	15,2	15,7	15,8	16,2	11,8
macroporosité	57,5	50.79	51.66	56.15	63.89	60.40
microporosité	41,3	48.18	46.22	41.43	34.09	37.69
nano porosité	1,3	1.03	2.12	2.41	2.02	1.91
Réseau de pore	bimodal	bimodal	bimodal	bimodal	bimodal	bimodal
Rayon moyen (µm)	10 et 150	8 et 160	12 et 150	8 et >400	12 et 190	18 et 150
Rayon d'accès (µm)	3.10	5.00	5,5	3.00	3.00	3.00
Coefficient de dispersion	2,3	2.52	2.24	2.92	2.26	2.07

	2 semaines				
	initiale	0-1 cm	1-2 cm	2-4 cm	4 - 7cm
Porosité (Nhg) (%)	11,0	10,6	9,5	13,4	11,7
macroporosité	57,5	49.45	47.81	61.32	57.61
microporosité	41,3	45.62	49.23	33.80	40.90
nano porosité	1,3	4.93	2.96	4.88	1.49
Réseau de pore	bimodal	bimodal	bimodal	bimodal	bimodal
Rayon moyen (µm)	10 et 150	6 et 120	8 et 200	8 et 150	8 et 120
Rayon d'accès (µm)	3.10	0,8	0,5	1 et 6	4 et 9
Coefficient de dispersion	2,3	6.16	4.83	8.70	5.57

	1 mois					
	initiale	0-1 cm	1-2 cm	2-3 cm	3-4 cm	4 - 5 cm
Porosité (Nhg) (%)	11,0	16,7	11,8	9,2	13,3	8,8
macroporosité	57,5	63.20	54.97	48.86	60.45	56.83
microporosité	41,3	34.55	42.92	47.35	37.25	40.97
nano porosité	1,3	2.25	2.11	3.79	2.30	2.20
Réseau de pore	bimodal	bimodal	bimodal	bimodal	unimodal	unimodal
Rayon moyen (µm)	10 et 150	12 et 150	9 et 150	9 et 150	9.00	8.00
Rayon d'accès (µm)	3.10	2.00	3.00	4.00	2.00	1.00
Coefficient de dispersion	2,3	3.18	2.30	2.88	3.57	3.61

	2 mois				
	initiale	0-1 cm	1-2 cm	2-4 cm	4 - 6 cm
Porosité (Nhg) (%)	11,0	8,5	9,3	8,0	8,8
macroporosité	57,5	50.46	42.07	53.51	47.07
microporosité	41,3	47.39	50.14	43.47	49.84
nano porosité	1,3	2.15	7.79	3.02	3.09
Réseau de pore	bimodal	bimodal	bimodal	bimodal	bimodal
Rayon moyen (µm)	10 et 150	8 et 150	6 et 150	6 et 150	8 et 150
Rayon d'accès (µm)	3.10	2 et 0,2	0,8 et 0,25	2 et 0,25	2 et 0,2
Coefficient de dispersion	2,3	2.83	2.60	5.49	2.04

**Annexe 3.D : Coefficient d'imbibition capillaire**



**Annexe 3.E : Évolution de la vitesse du son**

