

CHANGEMENT DES PROPRIÉTÉS HYDROMÉCANIQUES DES ROCHES GYPSEUSES SOUMISES À LA DISSOLUTION DE L'EAU

CHANGES IN HYDROMECHANICAL PROPERTIES OF GYPSUM ROCKS SUBJECTED TO WATER DISSOLUTION

Thibault COPPEE¹, Myriam DUC¹, Amade POUYA², Béatrice BECHET³

¹ GERS-SRO, Univ. Gustave Eiffel, F-77447 Marne-la-Vallée, France

² Lab Navier, Univ. Gustave Eiffel, ENPC, CNRS, F-77447, Marne-la-Vallée, France

³ GERS-EE, Univ. Gustave Eiffel, F- 44344, Bouguenais, France

RÉSUMÉ – Le gypse est une roche évaporitique qui se dissout au contact de l'eau ce qui entraîne des désordres géotechniques et dont les propriétés hydromécaniques sont peu étudiées via des tests de percolation malgré la présence d'une porosité intrinsèque au matériau. Cet article présente l'évolution microstructurale de 3 gypses aux textures et géologies différentes soumises à l'écoulement interne d'une eau sous saturée.

ABSTRACT – Gypsum is an evaporitic rock with dissolution causing geotechnical disorders, and whose hydromechanical properties remains little studied via percolation test despite the presence of intrinsic porosity in the material. The present paper details the microstructural evolution of 3 gypsum rocks with different textures and geologies under internal flows of unsaturated salted water.

1. Introduction

Le développement des activités anthropiques conduit à l'aménagement de zones sur substratum gypseux (ancienne carrière, zone géologiques avec des poches de gypse non identifiées...). Or les travaux d'excavation et de constructions peuvent conduire à une modification des écoulements dans le sous-sol (infiltration forcée, rabattement de nappe...) ou à la mise en contact d'une couche gypseuse jusque-là intacte avec une arrivée d'eau via la rupture de canalisation ou la modification de couvertures argileuses. Or les roches évaporitiques telles que le gypse ont la capacité de se dissoudre rapidement. Cette cinétique de dissolution rapide conduit généralement à considérer le phénomène d'altération du gypse comme un processus de surface et non pas comme un processus de dégradation de la structure poreuse de la roche. L'évolution interne de la masse gypseuse via l'écoulement dans la porosité est souvent négligée voire considérée comme impossible ou restreinte à une zone très limitée autour d'une fissures pré-existantes qui initient au final la formation de vastes cavités.

Les masses de gypse les plus exploitées sont le plus souvent de morphologies granulaires (saccharoïdes ou matricielles) contrairement aux gypses cristallisés en « fer de lance » ou « albastroïde » qui possèdent une structure massive. Au sein de ces formations, les volumes de vide structurel présentent une variabilité selon les morphologies et le contexte géologique allant de quelques pourcents à près de 20% (Tableau 1). Ces vides structurels ou liés à des fissures permettent la circulation de fluide et une dissolution interne au matériau (Coppée et al., 2022). La circulation hydraulique est dans certains cas suffisamment développée pour permettre la mise en place d'un gradient d'altération au sein de la masse gypseuse. Ces gradients qui peuvent être pluricentimétriques aboutissent à la formation de chemins préférentiels (ou karst) (Klimchouk, 2000).

La présente étude propose de décrire l'évolution des propriétés poromécaniques de 3 faciès de gypse soumis à un écoulement d'eau interne et sous saturée.

Tableau 1. Propriétés microstructurales et mécaniques de gypse issues de la littérature.

* Auvray (2003). BP : bassin parisien, ESP : Espagne, GB : Grande-Bretagne

| | Source | Lieu | Age | Porosité totale (%) | R _c (MPa) | Masse volumique (g.cm ⁻³) | Vitesse du son V _P (m.s ⁻¹) |
|---------------------------------|-------------------------|-----------|-------------|---------------------|----------------------|---------------------------------------|--|
| Contexte de bassin sédimentaire | *Asanza (1985) | BP | Eocène | 11,5 | 21,5 | 2,24 | 4000 |
| | *Durville (1993) | BP | Eocène | 16,6 | -- | 2,31 - 2,45 | 2000-4500 |
| | *Gumusoglu (1982) | Turquie | Quaternaire | 17,4 | 20,4 | 2,28 | -- |
| | *Massieu (1996) | BP | Eocène | 16 | 12,5 | -- | 4000 |
| | *Massieu (1997) | BP | Eocène | 10 | 17,7 | 2,1 | -- |
| | *Papadopoulos (1994) | Grèce | Néogène | 12 | 8,3 | 2,05 - 2,67 | |
| | 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 | -- | -- |
| Bustamante et al., (2020) | ESP | Oligocène | 0,7 – 13,8 | 26,6 | 2,2 | 3128 | |
| Contexte orogénique | *Bell (1981) | GB | Permien | 3,4 | 30,5 | -- | -- |
| | *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 |
| | Bertolus et al., (2017) | Provence | Trias | -- | 3,3 - 29,6 | 2,2 - 2,3 | 1550 - 3700 |

2. Matériaux et méthodes

2.1. Matériaux étudiés

Deux des gypses étudiés proviennent d'une carrière en exploitation dans l'Est de l'île de France. Ils sont issus des masses et marnes du gypse et sont datées du priabonien. Le gypse dénommé « matriciel » provient de la base de la première masse et le gypse dénommé « saccharoïde pur » de la deuxième masse. Le troisième gypse (saccharoïde à interlits) étudié est daté du Trias et provient d'une carrière localisée dans un diapir du sud-est de la France.

Une analyse par diffraction des rayons X montre que les faciès parisiens ont une teneur en gypse supérieur à 90%, avec du quartz, de la calcite et de la célestine. Le gypse triasique est également majoritairement composé de gypse (87%) mais avec une diversité minéralogique plus importante, avec de la phlogopite, des oxydes de fer, des argiles, du quartz... L'ensemble de ces minéraux possèdent des cinétiques de dissolution au contact d'eau pure négligeable ou du moins plus faible que celle du gypse. Ce dernier est considéré comme le seul minéral à se dissoudre dans les expériences présentées.

La caractérisation des propriétés poromécaniques initiales des faciès étudiés (Tableau 2) est décrite par Coppée et al. (2022) et Coppée (2023). Les caractéristiques les plus remarquables sont la présence d'une porosité (environ 10%) structurée différemment pour chaque faciès. Le faciès matriciel présente une porosité essentiellement nanoporale (<1 µm) avec une structure bimodale, tandis que le gypse saccharoïde pur présente une porosité macroporale (> 15 µm) avec une structure unimodale autour de 10 µm. Le gypse saccharoïde à interlits présente quant à lui une porosité macroporale (> 15 µm) avec une structure bimodale autour de 10 µm et de 150

µm. Ce pic à 150 µm correspond à des inter-stratifications formées par les minéraux secondaires de la roche gypseuse.

Au niveau mécanique, la résistance en compression des faciès étudiés est faible (< 10 MPa). Elle est homogène pour les gypses matriciels et saccharoïdes purs (environ 8MPa). Le gypse saccharoïde à interlits est moins résistant de par la présence des interlits déjà décrits (3.4 MPa). La détermination du module d'élasticité de manière dynamique E_{dyn} (via la vitesse du son) et E_{mod} (via la fréquence de résonance) donne des valeurs supérieures au module d'élasticité statique E_{stat} , de l'ordre de 20 GPa pour les gypses matriciel et saccharoïde pur et de l'ordre de 15 GPa pour le gypse saccharoïde à interlits.

Tableau 2 Tableau récapitulatif de la caractérisation des gypses étudiés.

* Le coefficient de dispersion traduit l'étalement des valeurs

| | Gypse matriciel | Gypse saccharoïde pur | Gypse saccharoïde à interlits |
|---|-----------------|-----------------------|-------------------------------|
| Porosité totale à l'eau (Nt) (%) | 9,7 +/- 2,4 | 10,5 +/- 2,8 | 8,0 +/- 2,0 |
| Porosité accessible (N_{4g}) (%) | 9,3 +/- 3,2 | 7,0 +/- 2,6 | 5,6 +/- 0,3 |
| Porosité piégée (N_p) (%) | 0,4 +/- 0,9 | 3,5 +/- 0,5 | 2,3 +/- 0,8 |
| Porosité totale (N_{Hg}) (%) | 9.4 | 12.4 | 11 |
| Macroporosité (%) | 32.3 | 69 | 57.5 |
| Microporosité (%) | 19.6 | 29.9 | 41.3 |
| Nanoporosité (%) | 48.1 | 1.1 | 1.3 |
| Réseau de pore | bimodal | unimodal | bimodal |
| Diamètre moyen des familles de pores (µm) | 0.1 et 0.7 | 20 | 10 et 150 |
| Coefficient de dispersion* | 11.3 | 1.6 | 2.3 |
| Vitesse de propagation des ondes P (m/s) | 3706 +/- 562 | 3390 +/- 378 | 2590 +/- 77 |
| Masse volumique (kg/m ³) | 2333 +/- 27 | 2280 +/- 35 | 2322 +/- 32 |
| Module d'élasticité dynamique E_{dyn} (GPa) | 22,7 +/- 0,6 | 20,5 +/- 0,4 | 15,9 +/- 0,3 |
| Fréquence de résonance (kHz) | 11,4 +/- 1,5 | 21,7 +/- 2,0 | 7,7 +/- 1,1 |
| Module d'élasticité modale E_{mod} (GPa) | 24,4 +/- 3,1 | 24,1 +/- 7,1 | 13,1 +/- 3,7 |
| Résistance en compression simple (MPa) | 7,9 +/- 5,1 | 9,9 +/- 2,6 | 4,3 +/- 1,0 |
| Module d'élasticité statique E_{stat} (GPa) | 7,0 +/- 2,7 | 8,2 +/- 3,9 | 3,4 +/- 2,4 |

2.2. Montage expérimental

Afin de simuler une altération par circulation hydraulique dans le matériau gypseux, un système de percolation a été développé à l'aide de cellules triaxiales modifiées. Nos échantillons sont des cylindres avec D=5 cm de H =10 cm (soit un élanement de 2).

L'échantillon est placé dans une membrane caoutchouc permettant d'isoler l'éprouvette de l'eau contenue dans la cellule triaxiale de confinement, avec à chaque extrémité un papier filtre pour éviter que les particules fines potentiellement arrachées lors du passage de l'eau ne sortent des éprouvettes. L'eau pénètre à la base de la cellule et circule du bas vers le haut. À chaque extrémité, une pierre poreuse est ajoutée afin d'obtenir un contact homogène sur l'ensemble du diamètre de l'éprouvette. Afin de garantir une pression constante, le réservoir d'eau qui percole dans l'éprouvette est raccordé à un système d'air comprimé avec un régulateur de débit d'air LRP (Festo), avec

une gamme de $P = 0,05$ à $2,5$ bar ce qui impose un débit max de $1,8\text{L}/\text{min}$. Dans le cadre de l'expérimentation, un débit d'air constant relativement faible avec $P = 0,3$ bar a été choisi. La cellule triaxiale 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 de l'eau dans l'échantillon maintient la membrane caoutchouc plaquée sur l'échantillon, imposant ainsi au fluide de passer dans le matériau poreux. Ce système est assez similaire à celui développé par Massard and Desplan (1980) ou Li et al. (2019).

Afin de favoriser la dissolution, les essais sont réalisés avec de l'eau pure ($15\text{M}\Omega\cdot\text{cm}$). L'absence de force ionique (ou salinité) initiale de l'eau qui percole rend la dissolution plus agressive et accélère ainsi le phénomène de dissolution. L'eau de percolation est récupérée de manière continue en sortie du montage et collectée périodiquement. Des pesées et un suivi conductimétrique des pots de collecte sont effectués pour suivre la quantité de matière dissoute, l'évolution de la quantité percolée au cours du temps (selon la perméabilité évolutive du matériau). De cette manière, on estime le taux d'altération des éprouvettes par leurs pertes de matière (Figure 1).

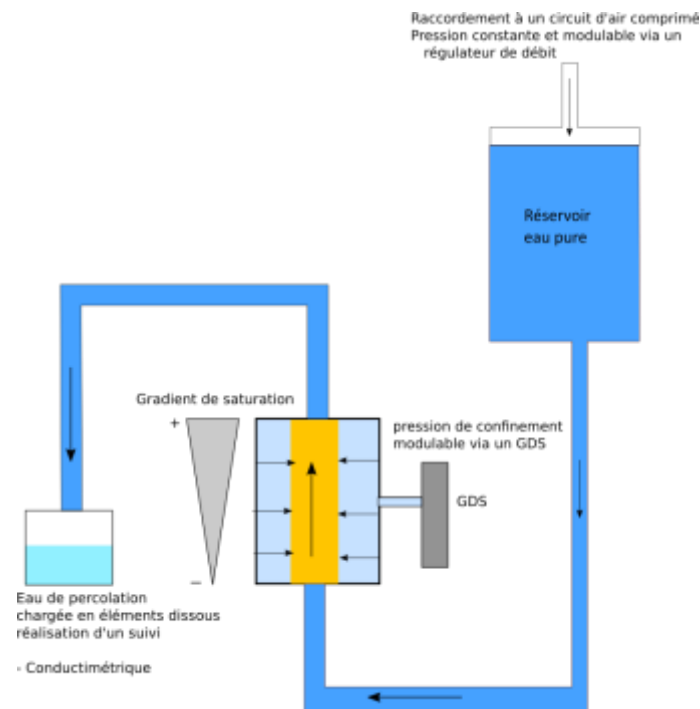


Figure 1. Schéma du montage expérimental de percolation

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 pour un faciès donné, éprouvettes 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 caractérisées hydro mécaniquement avant et après essais afin de suivre l'évolution des caractéristiques du matériau au cours de sa dégradation.

3. Résultats expérimentaux

3.1. Évolution du module d'élasticité

Le suivi des modules d'élasticité par des méthodes non-destructives (mesure de vitesse du son ou de fréquence de résonance) a été privilégié dans cette étude. Les résultats des modules d'élasticité (E_{dyn} et E_{mod}) montrent dans la Figure 2 une diminution nette avec la durée de la percolation. Le module d'élasticité du gypse matriciel diminue de $-6,3\text{Gpa}$ (soit -3%) dès la première semaine de percolation et reste stable pour les durées de

percolation suivantes pour la vitesse du son. La mesure du module à l'aide de la fréquence de résonance se révèle comme attendu, plus sensible à l'altération. Après 2 mois, une réduction de 70% de E_{dyn} du gypse matriciel est observée contre une réduction de 20 % de E_{mod} obtenue par la mesure de la vitesse du son. Cette sensibilité accrue de la fréquence de résonance se retrouve également sur les faciès saccharoïdes. Ces 2 faciès voient leurs modules d'élasticité se réduire de 20 % dès la première semaine de percolation puis à 40 et 60% après 1 mois de percolation. Les mesures à 2 mois ne sont pas interprétables, les mesures étant faussées par la mise en place de chemins préférentiels. Il s'agit de conduits traversant les éprouvettes et formées par une dissolution non-homogène.

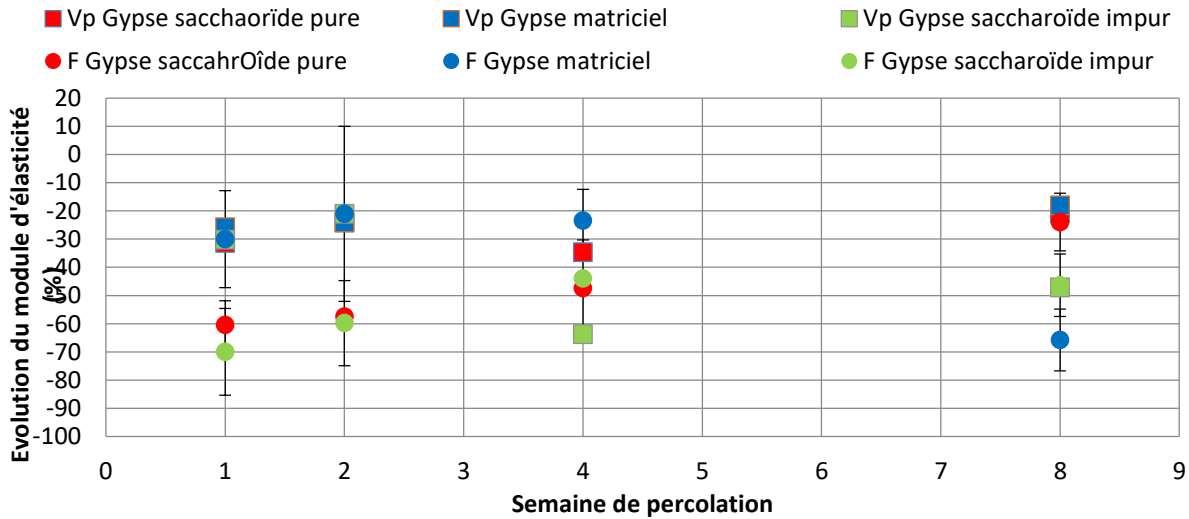


Figure 2 Évolution du module d'élasticité par la méthode de la vitesse du son et de la fréquence de résonance.

3.2. Évolution de la porosité

L'eau percolée au travers des éprouvettes sort de manière continue saturée en gypse (soit autour de 2.1 g gypse par L) pendant les périodes d'essai excepté les deux gypses saccharoïdes qui présentent des percolats sous saturées de manière intermittente avec le développement de chemins préférentiels. Une fois formés, ces chemins préférentiels ont la possibilité de s'obstruer lors de l'accumulation d'éléments insolubles (argiles, quartz, oxydes...) qui sont arrachés et emportés lors du passe de l'eau (phénomène d'érosion de trou favorisé par la dissolution). L'obstruction ramène le débit à sa valeur initiale et à la saturation de l'eau en sortie du montage expérimental.

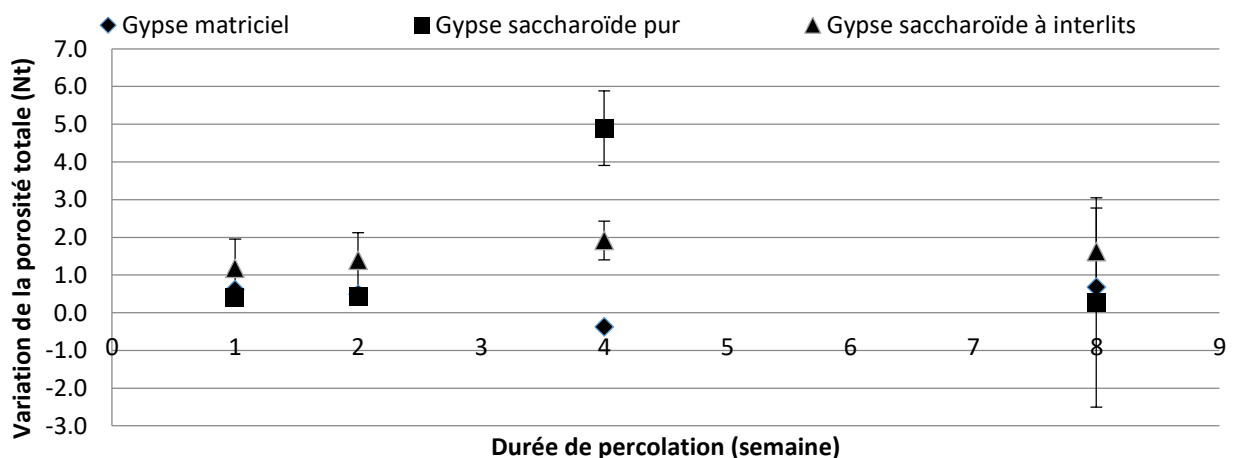


Figure 3 Évolution de la porosité totale accessible à l'eau (Nt) avec l'essai de percolation

Les débits sont stables dans le temps et varient selon les éprouvettes de 1.10^{-4} à 1.10^{-2} l.h⁻¹. L'eau saturée en sortie donne un taux de dégradation théorique de 10^{-4} à 10^{-5} g.m⁻².s⁻¹. La récession annuelle est ainsi estimée de l'ordre de 4 à 20 mm selon le faciès considéré. Cette estimation est en accord avec la littérature qui donne des taux de récession annuelle de 0 à 50 mm (Klimchouk et al., 1996). Des mesures de DRX effectuées post essais ne montrent pas clairement d'évolution sur le plan de la minéralogie (précipitation, lessivage...) hormis un enrichissement en phases secondaires compte tenu de la dissolution du gypse. De plus, la porosité totale (Nt) sur la Figure 4 montre une évolution quantifiable à partir d'un mois de percolation, et qui reste faible soit +1% pour le gypse matriciel et +2% pour les gypses saccharoïdes en fin d'essai de percolation. La porosité totale augmente principalement via l'augmentation de la porosité accessible (N48) (Figure 4). La porosité piégée (Np) est constante pour les faciès saccharoïdes et tend à se réduire dans le faciès matriciel. Cette réduction de la porosité piégée peut s'expliquer par un élargissement des conduits hydrauliques diminuant le phénomène de « court circuits » (Bousquie, 1979; Tomachot, 2002). Cette porosité ne tient pas compte du développement de chemins préférentiels pour les gypses saccharoïdes. Le faciès saccharoïde pur développe ce type de conduit entre 2 et 4 semaines de percolation lorsque la porosité totale augmente d'environ 4% puis reste constante entre 1 et 2 mois d'essai. Ainsi, le chemin préférentiel semble stabiliser la dissolution en diminuant les temps de séjour dans l'éprouvette et en captant l'écoulement. Dans le cas du faciès à interlits, le développement des chemins préférentiels se produit dès la première semaine de percolation avec tout d'abord un conduit de faible dimension puis qui s'élargit avec l'allongement de la durée d'essai.

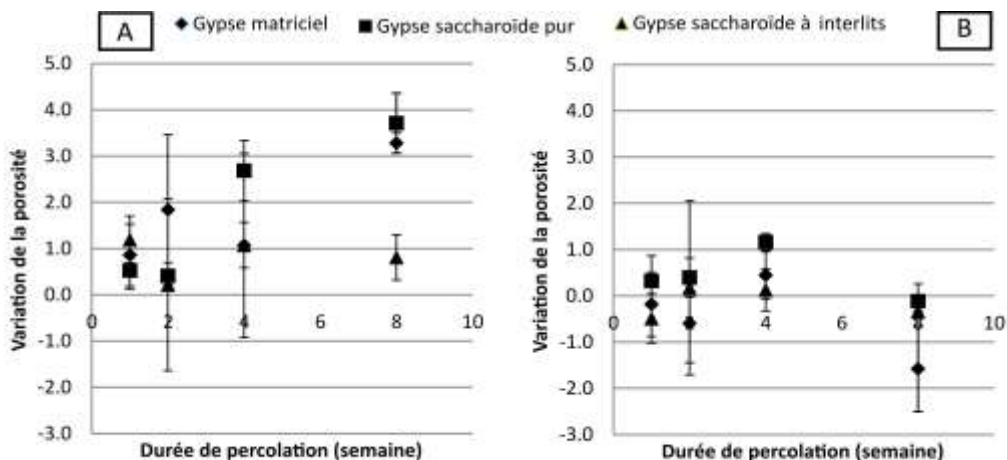


Figure 4 (A) Évolution de la porosité accessible (N48), (B) évolution de la porosité piégée (Np) à l'eau au cours de l'essai de percolation

Concernant l'évolution de la structure porales des 3 gypses testés, elle présente peu d'évolution notamment au niveau des diamètres d'entrée de pore mesurés par porosimétrie par intrusion de mercure (PIM) sur les 2 premiers pas de temps étudiés. Il est ainsi représenté sur la Figure 5, les pas de temps à 1 et 2 mois. Après un mois de percolation, le diamètre des pores du gypse matriciel s'élargit de 0,8 à 6 μ m. La famille des pores les plus petits présente également une évolution avec une démarcation se développant entre un pic à 0,04 μ m et celui présent initialement à 0,08 μ 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 voit une augmentation de sa taille d'un facteur 10, ce qui explique en partie la réduction de la porosité piégée avec la dissolution.

Le suivi PIM du gypse saccharoïde pur montre de son côté une évolution progressive du diamètre de pores de 10 à 20 μm pendant le premier mois de percolation. Au-delà, le développement de chemins préférentiels produit des dimensions de pores trop importantes ($>400 \mu\text{m}$) pour être quantifiable par la méthode de porosimétrie par intrusion de mercure. Toutefois on note que la base de l'éprouvette après 2 mois de percolation présente des familles bien développées de pores supérieurs à 100 μm . Atteignant des tailles de quelques dizaines de microns, les capillaires dans le gypse semblent dégénérer rapidement en conduit de chemin préférentiel ce qui suppose la présence d'une taille critique pour amorcer le développement de chemin préférentielle. Dans ce cas la dissolution devient préférentiellement superficielle à la surface du conduit contrairement à une dissolution en masse dans la porosité fine du matériau pour des tailles de pore réduite.

Enfin, 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 inhiber l'évolution de la porosité fine pour la plupart des éprouvettes testées en captant la majorité de l'écoulement.

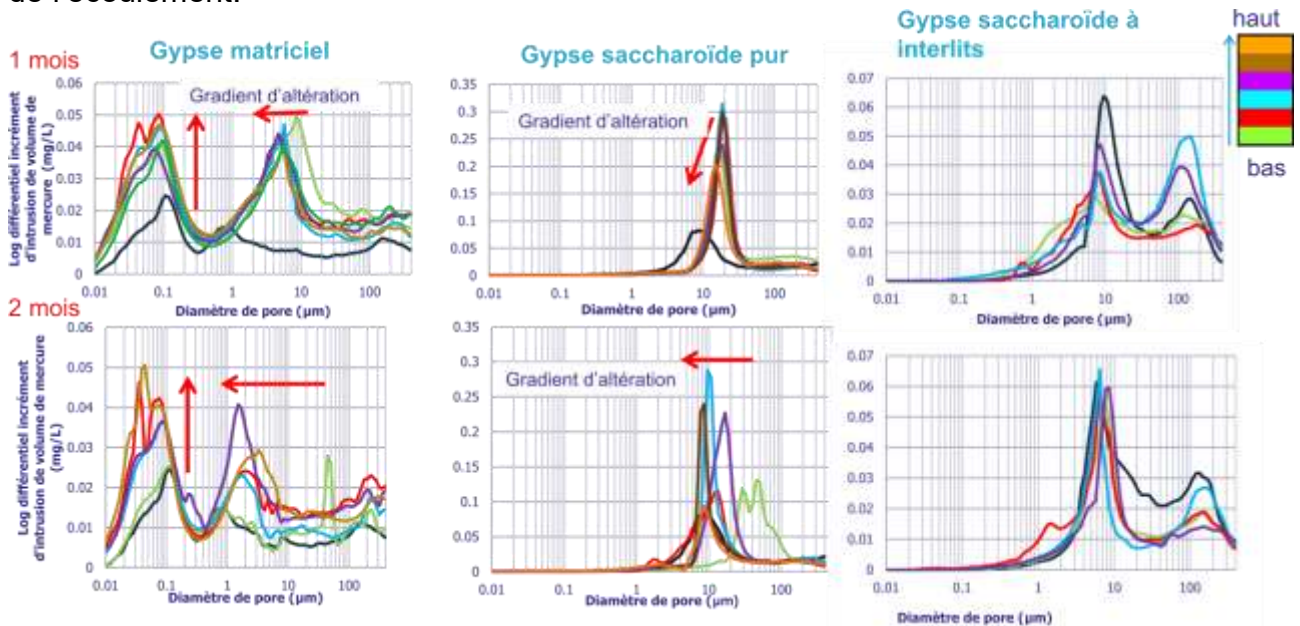


Figure 5 Évolution des diamètres moyens d'entrée de pores mesurés par porosimétrie par intrusion de mercure sur les faciès de gypse altérés après 1 et 2 mois de percolation.

4. Conclusion

Cette étude démontre qu'un écoulement d'eau est possible au sein d'une masse gypseuse, souvent considérée à tort comme peu ou pas perméable. Cette circulation hydraulique entraîne la formation d'un gradient de dissolution sur plusieurs centimètres en 2 mois de percolation, ce qui contraste avec l'idée d'une simple dissolution de contact compte tenu de la vitesse élevée de dissolution du gypse. Cette dissolution évolue de manière hétérogène et peut entraîner la formation de chemins préférentiels (karst ou conduits traversant les échantillons). Ce gradient d'altération est fortement influencé par la structure porale des faciès : le gypse matriciel nanoporeux ne développe pas de chemin préférentiel (sur le laps de temps de percolation étudié) contrairement aux faciès saccharoïdes microporeux. La vitesse de mise en place de ces chemins est conditionnée par la taille des pores : le faciès à interlits développe ainsi 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.

Quant à l'évolution des modules d'élasticité qui découle de l'évolution microstructurale des éprouvettes, une réduction des valeurs semble se produire mais cette évolution reste complexe à observer compte tenu de la possible variabilité entre éprouvettes testées. La diminution importante après la première semaine de percolation est suivie par une stabilisation du module élastique jusqu'à 2 mois de percolation.

5. Références bibliographiques

Auvray, C., 2003. Vieillissement et comportement rhéologique du gypse (mémoire de thèse). Institut national Polytechnique de Lorraine, Nancy.

Bertolus, I., Batilliot, L., Batista, D., Batteux, R., Séjourné, D., Valette, L., Serratrice, J.-F., Arnaud, S., 2017. Opération de recherche PRECAS (RPR2S12004) Sujet n°5 – Analyse de la stabilité des cavités – comportement, mécanismes de vieillissement dissolution. (No. PR2S12004). CEREMA, Aix en Provence.

Bousquie, P., 1979. Texture et porosité de roches calcaires: Université Pierre et Marie Curie, Paris.

Bustamante, R., Vázquez, P., Cantarell, M., Monjo, J., 2020. Adapted ageing tests for the evaluation of alabaster used in the restoration of Bishop's Palace of Tarazona. *Materials de Construcción* 70, 219–231. <https://doi.org/10.3989/mc.2020.08619>

Coppée, T., 2023. Étude expérimentale et numérique de la durabilité du gypse dans les structures géotechniques : Approche couplée hydro-mécanique et chimique (Thèse de doctorat). Université Gustave Eiffel, Champs sur Marne.

Coppée, T., Duc, M., Guedon, J.-S., Pouya, A., Bechet, B., 2022. Caractérisation de roches gypseuses: microstructures et propriétés mécaniques, in: 11emes Journées Nationales de Géotechnique et de Géologie de l'Ingénieur. Lyon.

Fabre, D., Dayre, M., 1982. 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.

Klimchouk, A., 2000. Speleogenesis under deep-seated and confined settings. pp. 244–260.

Klimchouk, A.B., Forti, P., Cooper, A.H., 1996. Gypsum karst of the world: a brief overview. *International Journal of Speleology* 25, 12.

Li, W., Einstein, H.H., Germaine, J.T., 2019. 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>

Massard, P., Desplan, A., 1980. La cinétique de dissolution à 20°C du calcaire oolithique du Dogger. *Bulletin de Minéralogie* 103, 317–323.

Moiriat, D., 2001. Evolution des désordres dans les carrières souterraines abandonnées (sciences). Paris Xi Orsay, Paris.

Moiriat, D., Pothérat, P., Massieu, E., Durville, J.L., 2006. Données expérimentales sur le fluage du gypse saccharoïde en condition saturée.

Tomachot, C., 2002. Modification des propriétés pétrophysiques de grès soumis au gel ou recouverts "d'encroûtements noirs vernissés" (mémoire de thèse). Université Louis Pasteur de Strasbourg, Strasbourg.