

MESURE ET MODELISATION DES PROPRIETES ELECTROMAGNETIQUES BASSES FREQUENCES DES MELANGES ARTIFICIELS ARGILO-SABLEUX NON CONSOLIDES

Rapport de stage de master réalisé au laboratoire UMR Sisyphe



Réalisé par

GONCA OKAY

Encadré par

PHILIPPE COSENZA CHRISTIAN CAMERLYNCK AHMAD GHORBANI

Année Universitaire 2006/2007

Abstract

An experimental investigation was undertaken to measure the Spectral Induced polarization response (0,046 Hz- 12 kHz) of unconsolidated sand-clay mixtures. These mixtures are also saturated by the demineralized water. Two types of clay, kaolinite and bentonite (mainly Na montmorillonite) were used with a various percentage. SIP-Fuchs II device and a four-electrode configuration were chosen during the measurement. We have compared these two types of clay. The results show the strong impact of the cation exchange capacity (CEC) of the studied clay minerals. Moreover, a heating process (150°, during two days) has been applied to an artificial sample with kaolin and sand material to examine the changes in the polarization effects. Unlike *Vacquier et al., 1957* we do not observed a significant change neither on the magnitude nor on the phase component. Moreover, our data do not show an optimum of clay content for which the polarization processes would be maximum. The SIP monitoring of the saturated bentonite material during a 5 days does not show meaningful different about the electrochemical process.

Résumé

Une campagne de mesures expérimentales a été réalisée pour étudier la réponse de PPS (Polarisation Provoquée Spectrale) dans la gamme (0.046 Hz-12kHz) de mélanges argilo-sableux non consolidés et saturés en eau déminéralisée. Deux types d'argile, la kaolinite et la bentonite (majoritairement composé de montmorillonite sodique) sont utilisés à différentes teneurs. Dans cette campagne, le dispositif SIP-Fuchs II et un porte-échantillon à 4 électrodes ont été choisis. Nous avons comparé ces deux types d'argile et les résultats ont montré l'importance du rôle de la capacité d'échange cationique (CEC). De plus, un processus de chauffage a été appliqué à un mélange composé de la kaolinite et de sable pour étudier le changement de polarisation. Suite à ce traitement thermique, contrairement à *Vacquier et al .(1957)*, nous n'avons pas observé de changement significatif ni sur le spectre d'amplitude ni sur le spectre de phase. En outre, nous n'avons pas observé d'optimum de teneur en argile pour lequel la polarisation mesurée serait maximum. Finalement, le suivi d'un mélange artificiel avec la bentonite pendant 5 jours de mesure ne montre pas d'anomalie concernant les processus électrochimiques.

Sommaire

INTRODUCTION	6
CHAPITRE 1 PRINCIPE DE LA METHODE ET THEORIES DE LA POLARISATIO	Ν7
1 PRINCIPE DE LA POLARISATION PROVOQUEE SPECTRALE	7
2 THEORIES DE LA POLARISATION	13
2.1 POLARISATION DE DOUBLE COUCHE ELECTRIQUE	13
2.2 MAXWELL WAGNER (POLARISATION D'INTERFACE)	14
CHAPITRE 2 ETUDE EXPERIMENTALE EN LABORATOIRE DES PROPRIETES	
EM DES MELANGES ET RESULTATS	14
1 PROPRIETES DE DEUX TYPES D'ARGILE	14
2 PROTOCOLE DE FABRICATION	17
3 DETERMINATION DES PROPRIETES DES ECHANTILLONS	18
4 APPAREILLAGE ET TECHNIQUE DE MESURE	21
5 RESULTATS ET DISCUSSION	24
5.1 COMPARAISON DES PROPRIETES EM DES ECHANTILLONS ARGILEO	JX
	25
5.2 EVOLUTION DEL AMPLITUDE ET DE PHASE DES MELANGES EN	20
	30
CUADITE 2 LITHISATION DULI OCICIEL COMSOL MULTIDUVSICS	40
	40
2 ETAPE DE MODELISATION	40
	48
4 CREATION DES MODELES ET RESULTATS	49
5 ILLUSTRATION D'EFFET DE MAXWELL-WAGNER	58
CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES	65
REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES	66

Liste des figures

Figure 1 Conduction de surface en présence de minéraux argileux « Modèle de la double	_
couche diffuse » (Wikimedia Commons)	8
Figure 2. Dispersion diélectrique associée aux différents processus de polarisation induite	_
(Guéguen Y., Palciauskas V. 1992)1	0
Figure 3 Echantillon1	1
Figure 4 Génération du potentiel de membrane (a) Avant application du champ électrique (b)
Après application du champ électrique (Ward & Fraser, 1967).	3
Figure 5 Polarisation d'interface (a) Polarisation d'interface de Maxwell (b) Polarisation	
d'interface de Wagner1	4
Figure 6 Structure de la kaolinite (Photo Bertaux).	5
Figure 7 Structure de la Bentonite (Photo F.Sondag)1	6
Figure 8 Exemples d' échantillons après l'étuve (les valeurs montrent les pourcentages	
massiques de l'argile)1	9
Figure 9 Mélange N° 3 (subi le traitement thèrmique) compact après le passage à l'étuve2	0
Figure 10 Appareillage et technique de mesure2	2
Figure 11 Méthode de mesure pour l'observation de l'homogénéité2	2
Figure 12 Spectre de phase apparente et d'amplitude d'un échantillon saturé en eau du	
robinet mesuré par une configuration à deux électrodes; Cu-CuSO4, Ag-AgCl, les électrodes	3
en platinum. Densité de courant 0,3.10-2 A/m2 (Vanhala & Soininen, 1992)2	3
Figure 13 (a) Spectre de phase des différentes résistances pures et effet d'impédance	
d'entrée et capacitance parasite de l'appareil sur les résultats (Ghorbani, A.) (b) spectre de	
phase des différents résistances des mélanges et les mêmes effets observés2	4
Figure 14 Spectre d'amplitude et de phase des mélanges préparés avec la kaolinite2	6
Figure 15 Spectre d'amplitude et de phase des mélanges préparés avec la bentonite2	7
Figure 16 Spectre de la conductivité réelle et imaginaire des mélanges avec la kaolinite2	9
Figure 17 Spectre de la conductivité réelle et imaginaire des mélanges avec la bentonite2	9
Figure 18 Evolution de l'amplitude et de phase du mélange N° 5 (Bentonite pure (40,8%))	
pour une période de 5 jours	2
Figure 19 Evolution de l'amplitude et de phase du mélange N° 6 (Bentonite (15%)+Sable)	
pour une période de 2 jours	3
Figure 20 Evolution de l'amplitude et de phase du mélange N° 7 (Bentonite (3,9%)+Sable)	
pour une période de 2 jours	4
Figure 21 Evolution de l'amplitude et de phase du mélange N° 8 (Bentonite (0,83%)+Sable)	
pour une période de 2 jours	5
Figure 22 Evolution de l'amplitude et de phase du mélange N° 4 (Kaolinite (0,82%)+Sable)	
pour une période de 2 jours	6
Figure 23 Conductivité réelle et imaginaire de deux types d'argile en fonction du pourcentage	е
massique à 93,75 Hz	7
Figure 24 Conductivité réelle et imaginaire de deux types d'argile en fonction du pourcentage	е
massique à 0,045776 Hz	8
Figure 25 Dépendance fréquentielle de o" pour deux types d'argile à deux fréquences3	9
Figure 26 Contrôle de l'homogénéité pour le mélange N° 5 (Bentonite pure (40,80%))4	1
Figure 27 Contrôle de l'homogénéité pour le mélange N° 6 (Bentonite (15%) +Sable)4	2
Figure 28 Contrôle de l'homogénéité pour le mélange N° 7 (Bentonite (3,90%) +Sable)4	3
Figure 29 Contrôle de l'homogénéité pour le mélange N° 8 (Bentonite (0,83 %) +Sable)4	4
Figure 30 Contrôle de l'homogénéité pour le mélange N° 4 (Kaolinite (0,82 %) +Sable)4	5
Figure 31 Paramètres de maillage	7
Figure 32 Modèle pour le calcul du coefficient géométrique4	9
Figure 33 Modèle N° 15	0
Figure 34 Modèle N° 25	0
Figure 35 Modèle N° 35	1
Figure 36 Modèle N° 45	1

Figure 37 Modèle N° 5	52
Figure 38 Modèle N° 6	52
Figure 39 Résultat de la modélisation du modèle N° 1	54
Figure 40 Résultat de la modélisation du modèle N° 2	54
Figure 41 Résultat de la modélisation du modèle N° 3.	55
Figure 42 Résultat de la modélisation du modèle N° 4	55
Figure 43 Résultat de la modélisation du modèle N° 5	56
Figure 44 Résultat de la modélisation du modèle N° 6	56
Figure 45 Illustration de la section prise pour le calcul du courant	57
Figure 46 Spectre de conductivité réelle et imaginaire des modèles créés	57
Figure 47 Modèle N° 2 à 1Hz, courbe de la densité de courant totale et courbe de la densit	é
des courants de déplacement	59
Figure 48 Modèle N° 2 à 12kHz, courbe de la densité de courant totale et courbe de la	
densité des courants de déplacement.	60
Figure 49 Modèle N° 2 à 1Hz, coupe 2, courbe de la densité de courant totale et courbe de	; la
densité des courants de déplacement.	61
Figure 50 Modèle N° 2 à 12kHz, coupe 2, courbe de la densité de courant totale et courbe	de
la densité des courants de déplacement	62
Figure 51 Modèle N° 7	63
Figure 52 Résultats de la modélisation du modèle N° 7	63
Figure 53 Modèle N° 7 à 1Hz courbe de la densité de courant totale et de la densité des	
courants de déplacement.	64

Liste des tables

Tableau 1 Quantités utilisées pour la préparation des mélanges	18
Tableau 2 Porosité et la teneur en eau massique des mélanges	20
Tableau 3 Propriétés des modèles	53

INTRODUCTION

La méthode de la Polarisation Provoquée Spectrale (PPS) est sensible à des propriétés capacitives à basse fréquence des roches et du sol généré par le processus de la polarisation contrôlée par la diffusion à l'interface des grains minéralogiques et le fluide des pores. Les scientifiques ont montré la sensibilité des mécanismes de la polarisation surfacique au changement de la lithologie et à la chimie du fluide contenu dans les pores (*Slater et Lesmes, 2002*). Cette méthode est largement utilisée depuis quelques décades pour des applications environnementales (par exemple, la détection de panaches de

Il existe également quelques exemples (*Illiceto et al, 1982 et Vinegar et Waxman, 1984*) pour la détection de l'argile. *Telford et al (1990*) ont suggéré qu'il existait une teneur en argile optimale pour laquelle la polarisation mesurée serait maximum.

polluants).

Toutefois, ces études ont été réalisées avec de dispositif dans le domaine temporel (polarisation provoquée classique) et la nature minéralogique de l'argile n'a pas été investiguée.

Ce mémoire présente une campagne de mesures de PPS (spectres mesurés dans la gamme 0.046 Hz-12 kHz) et de modélisation sur les mélanges artificiels argilo sableux non consolidés et saturés en eau déminéralisée. On se place donc dans le cas où les ions présents dans la solution sont ceux provenant de la surface des minéraux argileux. Durant les expériences, deux types d'argile ont été utilisés : la kaolinite et la bentonite (majoritairement constituée de montmorillonite sodique) en faisant varier le pourcentage massique en argile du mélange.

Le mémoire comprend également un volet théorique. En vu d'interpréter les données expérimentales et de comprendre les phénomènes physiques sous-jacents, il s'agissait d'établir par un outil numérique les relations entre la microstructure des géomatériaux argileux et la mesure PPS (la propriété effective).

La première partie du mémoire comprend le principe de la méthode et les théories de la polarisation, la deuxième partie concerne les études expérimentales des propriétés EM des mélanges et les résultats suivis d'une discussion, et finalement la troisième partie comprend l'utilisation du logiciel Comsol, le calcul du coefficient géométrique du dispositif expérimental et la présentation des résultats numériques.

CHAPITRE 1 PRINCIPE DE LA METHODE ET THEORIES DE LA POLARISATION

.....

1 PRINCIPE DE LA POLARISATION PROVOQUEE SPECTRALE

Pour comprendre les phénomènes physiques et les processus de polarisation provoquée, commençons par rappeler quelques notions de base.

On distingue quatre types de propriétés des sols et des roches. Ce sont la résistivité (ρ) ou la conductivité (σ) électriques qui décrivent la facilité du transport des charges électriques, la permittivité diélectrique (ϵ) et la perméabilité magnétique (μ). Dans le cadre de ce rapport, on ne s'intéresse pas à la perméabilité magnétique mais les autres paramètres cités au dessus sont discutés. Il faut distinguer les phénomènes en terme de régime à haute fréquence (10MHz-1GHz) et à basse fréquence (1mHz-10kHz).

A basse fréquence les mécanismes physiques qui créent la conduction sont la conduction électronique (l'électron porte les charges), la conduction ionique ou électrolytique (les cations en solution portent les charges) et la conduction de surface.

*Conduction électronique : Dans la nature, les matériaux peuvent être classés en trois catégories :Les conducteurs, les semi-conducteurs et les isolants. Comme tous les solides sont composés d'électrons, il existe aussi une répartition d'énergie. Cette répartition d'énergie peut être discrète et séparée par des bandes énergétiques vides qui favorisent le déplacement des électrons à des niveaux plus élevés sous un champ électrique externe. C'est le cas d'un conducteur. Dans le cas d'un semi-conducteur, le barrière d'énergie est faible et la conduction dépend de la température. En cas de remplissage total des bandes d'énergies, l'accès des électrons à des niveaux plus élevés est stoppé ; il s'agit alors d'un isolant (Guéguen Y., Palciauskas V. 1992).

***Conduction ionique** : Le déplacement des charges se fait par les ions grâce à la diffusion. Dans le sol et les roches la conduction dominante est la conduction électrolytique.

*Conduction de surface : L'hypothèse à propos de l'homogénéité de la concentration en ions mobiles qui résulte de l'homogénéité de la conductivité de l'électrolyte n'est plus valable en présence d'argile. Dans ce cas, à l'interface pore-fluide, il existe des charges supplémentaires accumulées qui créent une conduction de surface. Le déficit de charges est compensé par l'absorption de cations à la surface du minéral. Les cations adsorbés forment la double couche électrique des argiles. Ce modèle de la double couche électrique est constitué de la couche de Stern et de la couche diffuse (modèle Stern). Les ions de la couche diffuse sont responsables de la couche diffuse se déplacent facilement le long des interfaces. La composante de conductivité de surface est localisée le long des interfaces et est proportionnelle à la surface de pores (*Guéguen Y., Palciauskas V. 1992*).



Figure 1 Conduction de surface en présence de minéraux argileux « Modèle de la double couche diffuse » (*Wikimedia Commons*).

Il faut noter que ce modèle est très important en terme de mécanismes de polarisation provoquée (spectrale).

Pour les basses fréquences, nous avons parlé de la conductivité alors que pour les hautes fréquences, les propriétés diélectriques interviennent. Avant de parler des types de polarisation à haute fréquence il est important de définir un paramètre qui relie le champ électrique appliqué au champ induit : la permittivité diélectrique. A l'échelle microscopique, la séparation des charges produit un champ induit qui s'oppose au champ appliqué. Ceci est pareil pour deux charges (+ et -) séparées par une distance "d" et qui forment un dipôle de moment "qd". Alors la polarisation \overrightarrow{P} du milieu peut être définie comme le moment dipolaire total par unité de volume. A l'échelle macroscopique cet effet est décrit par le coefficient $\boldsymbol{\varepsilon}$.

permittivité du milieu. Dans ce cas-ci la relation est :

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P_e} = \varepsilon \vec{E}$$
(1)

A haute fréquence, il peut y avoir un retard de polarisation donc un déphasage entre le champ appliqué et le champ induit. Alors la relation prend une autre forme que la permittivité diélectrique est une grandeur complexe.

$$\vec{D}_0 \cos(\omega t + \varphi) = \varepsilon \vec{E}_0 \cos(\omega t) \qquad \cos(\omega t) \to e^{j\omega t}$$
(2)

$$\vec{D}_0 e^{j(\omega t + \varphi)} = \varepsilon \vec{E}_0 e^{j\omega t}$$
(3)

$$\vec{D}_0 e^{j\omega t} = \varepsilon \vec{E}_0 e^{j(\omega t - \varphi)}$$
(4)

$$\vec{D}_0 e^{j\omega t} = \varepsilon \vec{E}_0 e^{j\omega t} \left[\varepsilon e^{-j\varphi} \right] \qquad \qquad z = a + jb = \left| \varepsilon \right| e^{-j\varphi} \tag{5}$$

$$\vec{D}_0 e^{j\omega t} = \vec{E}_0 e^{j\omega t} \left(\varepsilon' - \varepsilon'' \right) \tag{6}$$

$$\vec{D}' = \varepsilon * \vec{E}' \tag{7}$$

$$\varepsilon^* = \varepsilon' - j\varepsilon'' \tag{8}$$

Où $\boldsymbol{\epsilon}^*$ est la permittivité complexe, $\boldsymbol{\epsilon}$ ' est la partie réelle de la permittivité complexe et $\boldsymbol{\epsilon}$ " est la partie imaginaire de la permittivité complexe. En terme de densité totale de courant, en cas d'application d'un champ électrique externe variant avec le temps, il existe deux types de courant générés dans le milieu. Ce sont les courants de conduction et les courants de déplacement. Les courants de conduction sont générés par le mouvement des charges libres dans l'espace et la contribution des charges libres est dominante à basse fréquence, tandis que les courants de déplacement sont générés par le mouvement des charges liées dans le milieu et la contribution des charges liées est dominante à haute fréquence (Avec la polarisation provoquée spectrale, on observe une grande variation et contribution des effets de ces deux phénomènes suivant une large gamme de fréquences). La densité totale de courant est :

$$J_{tot} = \frac{1}{\rho}E + \frac{\partial D}{\partial t}$$
(9)

Dans cette équation, le premier terme est la densité de courant de conduction. Il peut aussi s'écrire $J_c = \sigma E$. Pareillement à la permittivité diélectrique, la conductivité aussi est une grandeur complexe, $\sigma^* = \sigma' + i\sigma''$. (10)

Où σ^* est la conductivité complexe, σ' est la partie réelle de la conductivité et σ'' est la partie imaginaire de la conductivité.

Le deuxième terme de l'équation (9) est la densité de courant de déplacement. La permittivité diélectrique et la conductivité sont des grandeurs liées pour les fréquences intermédiaires.

D'après *Olhoeft, 1976, 1979 ; Chelidze et Guéguen,1999* les différents contribuants aux processus de la polarisation à haute fréquence sont la polarisation électronique (10¹⁵Hz), la polarisation ionique (10¹²-10¹³ Hz), la polarisation dipolaire (10¹⁰Hz) et la polarisation des charges d'espace (~kHz-MHz). Cette dernière constitue l'un des principaux mécanismes de polarisation. Cet effet est appelé Maxwell-Wagner (effet d'interface) qui dépend de la microstructure et des minéraux constitutifs. On en discutera dans la suite du rapport. La figure 2 illustre les différents processus en fonction de fréquence par un spectre de permittivité diélectrique réelle simplifié.



Figure 2. Dispersion diélectrique associée aux différents processus de polarisation induite (*Guéguen Y., Palciauskas V. 1992*).

On peut donc dire que sous l'application d'un champ électrique statique (le courant ne change pas avec le temps ou un changement très faible) on arrive à comprendre la méthode de la résistivité électrique en se basant sur la loi d'Ohm.

$$U = R * I \tag{11}$$

Sous l'application d'un champ électrique quasi-statique (le courant varie avec le temps) (à basse fréquence) le phénomène physique des mesures est lié à deux notions, l'impédance complexe et la résistivité complexe. Pour une mesure « courant alternatif », les propriétés capacitives du milieu se manifestent en excès à la résistance pure. Dans ce cas, la loi d'Ohm a été généralisée pour tenir compte des effets liés à la fréquence, et le rapport potentiel sur courant est appelé impédance plutôt que résistance.



Figure 3 Echantillon.

L'impédance complexe est définie par Pelton et al. 1983 :

$$U = Z^*(f)I \tag{12}$$

$$Z^{*}(f) = |Z^{*}(f)|e^{j\varphi(f)}$$
(13)

$$o^*(f) = K Z^*(f) \tag{14}$$

Où I est le courant, $Z^*(f)$ est l'impédance électrique complexe, $|Z^*(f)|$ est l'amplitude de l'impédance, $\varphi(f)$ est la phase d'impédance, $\rho^*(f)$ est la résistivité complexe, K est le coefficient géométrique et f est la fréquence.

La méthode de "polarisation provoquée" s'applique en régime linéaire avec une densité de courant suffisamment faible et elle est basée sur le concept que la résistivité du matériau est une quantité complexe dépendante à la fréquence (Vanhala H., Soininen H, 1995).

Donc *le principe des mesures de la polarisation provoquée spectrale* est de mesurer l'amplitude et le changement de phase suivant une large gamme de fréquences de l'ordre de 10^{-2} Hz jusqu à 10^4 Hz.

On peut présenter les résultats des mesures sous différentes formes : soit en terme amplitude et phase, soit en terme de parties réelle et imaginaire de l'impédance. Le choix revient au manipulateur de présenter les mesures du point de vue de l'impédance ou du point de vue de la résistivité, de la conductivité, ou de la permittivité diélectrique, tout étant calculable par l'impédance mesurée et de la géométrie de l'échantillon. Chaque de ces paramètres contient un terme de conservation de l'énergie total et un terme de perte d'énergie (*Knight et Endres, 2003*).

Dans la suite du rapport, la conductivité réelle et imaginaire, le spectre de phase et d'amplitude sont choisis pour la représentation des données. Parmi ces paramètres, l'amplitude $| \mathbf{p} |$ est importante pour observer le changement de la teneur en eau du mélange. La phase mesurée définit la magnitude de polarisation par rapport aux magnitudes de conduction *(Slater et Ulrich, 2004)*. Elle est aussi sensible aux propriétés de la polarisation surfacique du matériel *(Slater et Lesmes, 2002)*.

La composante en phase de la conductivité (σ ') représente les courants de conduction ohmique (perte d'énergie) alors que la composante en quadrature de la conductivité (σ '') représente les phénomènes de polarisation (conservation d'énergie). D'après *Lesmes et Frye, 2001* la partie imaginaire de la conductivité complexe (σ '') est sensible aux propriétés chimiques de surface qui sont elles-mêmes sensibles aux changements des paramètres microstructuraux. Ces paramètres et la permittivité diélectrique sont liés de la manière suivante :

$$|\rho| = \sqrt{\rho'^2 + \rho''^2}$$
 (15)

$$\rho^* = |\rho|(\cos(\varphi) + i\sin(\varphi)) \tag{16}$$

$$\rho' = |\rho|\cos(\varphi) \tag{17}$$

$$\rho'' = |\rho|\sin(\varphi) \tag{18}$$

$$\sigma^* = \frac{1}{\rho^*} = \frac{1}{\rho' + i\rho''} = \frac{\rho' - i\rho''}{(\rho' + i\rho'')(\rho' - i\rho'')} = \frac{\rho' - i\rho''}{\rho'^2 + \rho''^2} = \frac{\rho'}{|\rho|^2} - i\frac{\rho''}{|\rho|^2}$$
(19)

$$\sigma' = \frac{\rho'}{\left|\rho\right|^2} \qquad \sigma'' = \frac{\rho''}{\left|\rho\right|^2} \qquad \varphi = \tan^{-1} \left[\frac{\sigma''}{\sigma'}\right] \cong \left[\frac{\sigma''}{\sigma'}\right] \qquad (20)$$

$$\sigma'' = \omega \varepsilon'$$

$$\sigma' = \omega \varepsilon''$$
(21)

2 THEORIES DE LA POLARISATION

Il existe deux origines liées au mécanisme de polarisation à basse fréquence (10 mHz – 10 kHz) : La première origine est l'électrochimique et elle est liée à l'existence d'un EDL (double couche électrique : Electrical Double Layer en anglais) à l'interface entre les phases solides et liquides. La deuxième origine principale de polarisation à basse fréquence (de l'ordre de kHz) est géométrique et interfacial.

2.1 POLARISATION DE DOUBLE COUCHE ELECTRIQUE

Ce phénomène est plus ou moins bien compris, mais on suppose qu'il s'agit d'un genre de filtration d'ions dû à la présence de minéraux argileux. Dans ce cas, des ions de diamètres différents sont séparés à cause de la finesse des pores du matériau qu'ils essaient de traverser. Les argiles agissent comme des filtres très fins, le diamètre des pores étant du même ordre de grandeur que celui des ions. Cependant, les ions négatifs ont tendance à être plus gros que les ions positifs et sont davantage retenus. Ceci produit une surface chargée négativement. Les charges négatives attirent un certain nombre de charges positives pour maintenir l'équilibre électrique. Sous l'effet de forces physique (forces de Van der Waals) ou chimique (liaisons covalentes), ces ions sont absorbés sur la surface et une double couche électrique en résulte. Lorsqu'un courant traverse les argiles, l'équilibre de la double couche est rompu et une nouvelle forme d'équilibre s'établit sur une certaine période de temps. Lorsque le courant d'excitation est alternatif, les charges se redistribuent à chaque fois selon leur état d'équilibre. Comme un délai se produit, on a un effet P.P. La chose la plus importante à retenir est que l'effet P.P. provient du blocage des ions dans un conducteur ionique (*Chouteau, M*).



Figure 4 Génération du potentiel de membrane (a) Avant application du champ électrique (b) Après application du champ électrique (Ward & Fraser, 1967).

2.2 MAXWELL WAGNER (POLARISATION D'INTERFACE)

Le mécanisme de polarisation d'interface provient des différences dans la conductivité et la polarisabilité parmi les composantes dans une mixture, en produisant l'accumulation de charge à l'interface. Le premier calcul lié à la polarisation d'interface est effectué par *Maxwell (1891)* qui a considéré un matériel à deux couches. Comme Wagner a résolu la permittivité complexe d'une suspension dilue des sphères conductrices, la polarisation d'interface est aussi connue comme l'effet de Maxwell Wagner.



Figure 5 Polarisation d'interface (a) Polarisation d'interface de Maxwell (b) Polarisation d'interface de Wagner.

Il se génère dans un milieu hétérogène où il existe une matrice isolante contenant des particules conductrices responsable d'une forte polarisation. Sous l'application d'un champ électrique externe, si le milieu est poreux et s'il contient une solution d'électrolyte, les ions de charges opposées se déplacent dans des directions opposées et s'accumulent aux interfaces où ils restent bloqués. Ceci crée une polarisation d'interface et un constant diélectrique élevé. Ce phénomène est connu sous le nom de Maxwell Wagner.

CHAPITRE 2 ETUDE EXPERIMENTALE EN LABORATOIRE DES PROPRIETES EM DES MELANGES ET RESULTATS

1 PROPRIETES DE DEUX TYPES D'ARGILE

.

L'argile est une roche sédimentaire, produit de la décomposition de roches riches en feldspath, composée pour une large part de minéraux spécifiques, silicates en général d'aluminium plus ou moins hydratés, qui présentent une structure feuilletée qui explique leur plasticité, ou bien une structure fibreuse qui explique leurs qualités d'absorption. Durant les expériences, deux types d'argiles sont utilisés. Ce sont la kaolinite et la bentonite. Ces deux types d'argiles ont des propriétés différentes (structure, CEC, surface spécifique...).

Kaolinite

La kaolinite est un minéral composé de silicate d'aluminium hydraté, de formule Si4 Al4 010 0H8. de la famille des phyllosilicates. Chaque feuillet, de 0,7 nm d'épaisseur est composé de deux couches, Si02 disposé en tétraèdres, Al 0H3 organisé en octaèdres. Les liaisons entre feuillets sont suffisamment fortes pour empêcher tout gonflement par adsorption d'eau interfoliaire. Elle possède une faible surface spécifique de l'ordre de 20 m²/g.



Figure 6 Structure de la kaolinite (Photo Bertaux).

Les minéraux du groupe de la kaolinite sont probablement les plus communs des minéraux argileux. Ils sont principalement formés par l'altération hydrothermale ou l'altération météorique des feldspaths, feldspathoïdes et autres silicates. Ils sont souvent accompagnés par le quartz, les oxydes de fer, la sidérite, la muscovite, et par d'autres minéraux argileux.

Les travaux expérimentaux indiquent qu'à basse température et basse pression, les conditions acides favorisent la formation de la kaolinite. Les conditions alcalines favoriseraient la formation des smectiques ou, s'il y a suffisamment de potassium, du mica. Aux alentours de 400°C à pression modérée, se forme de la pyrophyllite. Les recherches sur le terrain indiquent que les roches qui s'altèrent en kaolinite sont habituellement des types les plus acides (granites, diorites quartziques, etc...), alors qu'avec les roches riches en calcium et sodium se forme préférentiellement de la montmorillonite. La composition chimique de la kaolinite est sujette à de petites variations. Les analyses montrent qu'une petite quantité des ions peuvent se substituer dans la structure, mais les limites de substitution ne peuvent pas être facilement définies.

La kaolinite a une faible capacité d'échanges de cations (~ 10 meq/100g) en comparaison avec les autres argiles (illite : 20 meq/100g ; montmorillonite : 100 meq/100g ; halloysite : 40 meq/100g). Cependant sa capacité d'échange d'anions est plus grande, et peut être attribuée à la présence d'ions OH- à l'extérieur des feuillets. La capacité de la kaolinite à fixer les ions phosphates est d'une grande importance en pédologie.

La kaolinite possède peu ou pas d'eau de surface adsorbée. Entre 400 et 525 °C, elle perd son eau de constitution. Entre 650 et 800 °C, elle perd toutes les molécules d'eau et les ions OH-. Elle se transforme alors en méta kaolinite. Au-delà de 800 °C, sa structure est perturbée et ne peut plus être reconstituée par réhydratation. Elle se transforme en un assemblage de mullite + cristobalite durant un stade intermédiaire par une phase spinelle.

Bentonite

Le terme bentonite a été employé en premier par *Knight (1898)* pour décrire une argile plastique fortement colloïdale et fortement gonflante, de structure en feuillets , favorables pour les propriétés d'absorption et de viscosité, de la région de Fort Benton au Wyoming, Etats-Unis d'Amérique *(Grim, 1968).* Ce terme a ensuite été étendu aux matériaux naturels dont la composition et les propriétés sont dominées par les smectites.

Microscopiquement, chaque feuillet de la bentonite, a d'environ 0,10 nm d'épaisseur et est composé de trois couches, une octaédrique en sandwich entre deux tétraédriques.



Figure 7 Structure de la Bentonite (Photo F.Sondag).

La bentonite est constituée de cendre volcanique altérée qui est classée parmi les argiles. Elle est constituée principalement de montmorillonite (Na, Ca) 0.33 (Al, Mg)₂ Si₄O $_{10}(OH)_2 \cdot (H_2O)n.(80\%)$ et d'autres smectites (beidellite, nontronite, saponite et hectorite), et ce, quelle qu'en soit l'origine ou l'environnement dont elle provient. On trouve également d'autres éléments comme le quartz, le mica, le feldspath, la pyrite ou la calcite. Les minéraux du groupe de la smectite possèdent tous la même structure et sont de type dioctaédrique ou trioctaédrique, mais leur composition chimique est différente. La bentonite est difficile à caractériser en raison de sa composition chimique variable. Elle est connue pour ses propriétés de gonflement et peut augmenter son volume jusqu' à occuper plusieurs fois son volume initial. Elle est classée en fonction de sa capacité de gonflement, laquelle dépend de sa teneur en sodium et en calcium. La bentonite est constituée de feuillets de silice et d'alumine non consolidés. Ces feuillets sont facilement séparés, ce qui favorise leur dispersion dans l'eau.

La littérature rapporte des valeurs de capacité d'échange cationique comprise entre 85 et 160 meq/ 100g (*Comparon, L.*).

2 PROTOCOLE DE FABRICATION

Huit mélanges artificiels argilo sableux non consolidés sont préparés en cas de saturation avec l'eau déminéralisée de résistance 18 Mohm. Ces mélanges sont faits à partir de la kaolinite (densité des grains ρ = 2,6 g/cm³), de la bentonite (densité des grains ρ = 2,77 g/cm³) et du sable de Fontainebleu (densité des grains ρ = 2,65 g/cm³). Les pourcentages massiques (ramenés à la masse totale) en argile des mélanges préparés avec la kaolinite sont 0.82%, 4.23%, 16.94%, 68.82%. Les quatre autres mélanges préparés avec la bentonite ont des pourcentages massiques de l'ordre de 0.83%, 3.9%, 15%, 40.8%.

En fabriquant ces mélanges, le volume est fixé par 2833,85 cm³ (pour une hauteur de 10 cm dans le porte-échantillon). Avant de les préparer, on fait une estimation de la porosité des mélanges en mixant les matériaux jusqu'à obtenir des volumes de 50cm³ à 200 cm³. Si ces mélanges sont en cas de saturation donc nous avons supposé que notre estimation de porosité était correcte.

Pour pouvoir définir les quantités des constituants de ces mélanges nous avons pensé à deux techniques. Premièrement, on suppose connue la densité finale du mélange. Et puisque le volume est fixe, la masse totale du mélange (solide+eau) peut être calculée par la formule suivante :

$$\rho_{\text{final}} * V = M_{\text{finale}}$$
 (22)

Ensuite, à l'aide de l'estimation de porosité, nous avons déterminé avec la formule suivante, la quantité de l'eau déminéralisée utilisée :

$$\Phi = V_{eau} / V_{final} = (m_{eau} / \rho_{eau}) / (m_{finale} / \rho_{finale})$$
(23)

La porosité Φ , la densité de l'eau ρ_{eau} , la masse finale du mélange M_{finale} et la densité finale ρ_{finale} étant connues, la masse d'eau peut être définie. Et si on la soustrait de la masse finale, on trouve la masse de kaolinite ou de bentonite.

Le deuxième calcul de détermination des quantités des composants du mélange est basé sur le volume et la porosité. Par exemple, avec 30% de porosité, en cas de saturation, le pourcentage volumique de l'eau représentera 30% du volume total et le pourcentage du solide 70% de volume total. La partie solide peut être constituée de sable et d'argile. Supposons 80% de sable avec 20% d'argile. Puisque le volume final du mélange est fixe, le volume de l'eau sera V_{total} * 0,3, le volume du solide sera V_{total} * 0,7 et le volume du sable sera V_{total} * 0,7 et le volume du sable sera V_{total} * 0,7 et le volume de l'argile V_{total} * 0,7*0,2. En les multipliant avec la densité des grains on peut arriver à la masse utilisée. Les quantités massiques utilisées pour chaque mélange sont données à la table attributaire 1.

Nature	% Massique d'argile	Φ _{estimée}	M _{mélange} total	M _{eau}	Margile	M sable
et N° du mélange		(%)	(g)	(g)	(g)	(g)
*Kaolinite Pure 1	68,82	53	4817,55	1501,94	3315,61	
Kaolinite+Sable 2	16,94	30	6087,11	850,16	1031,51	4205,43
Kaolinite+Sable 3	4,23	30	6101,99	850,16	257,88	4993,95
Kaolinite+Sable 4	0,82	35	5872,18	991,8	47,89	4832,49
*Bentonite Pure 5	40,8	74	3542,31	2097,05	1445,26	
Bentonite+Sable 6	15	50	5205,83	1416,93	785	3003,9
Bentonite+Sable 7	3,9	45	5414,89	1275,23	215,86	3923,8
Bentonite+Sable 8	0,83	40	5641,4	1133,54	47,09	4460,76

Tableau 1 Quantités utilisées pour la préparation des mélanges

M=Masse, Φ=Porosité, * Basée à la premier technique de détermination des quantités.

Durant la préparation, dans un premier temps nous avons mixé la phase solide (argile+sable) à sec à partir d'un mixeur électrique pour assurer une distribution homogène de l'argile dans le sable. Ensuite l'eau déminéralisée est ajoutée progressivement au mélange solide directement dans le porte-échantillon (colonne) cylindrique en PVC en évitant les agrégats qui peuvent générer l'hétérogéinité. C'était plus difficile à manipuler avec la bentonite qu'avec la kaolinite à cause de sa plasticité et sa grande capacité d'absorption de l'eau. Nous avons fait attention à ne pas perdre de masse pendant la préparation et le mixage.

3 DETERMINATION DES PROPRIETES DES ECHANTILLONS

La porosité attribuée aux mélanges était une estimation. Donc pour mieux définir les propriétés physiques des mélanges préparés, nous avons récupéré un échantillon de chaque mélange à l'aide d'un cylindre de 25 cm³ (en évitant de laisser de l'air à l'intérieur). Ensuite ces échantillons sont mis à l'étuve durant une journée à 150 C⁰. Leurs masses initiales et finales sont notées pour déterminer la teneur en eau massique. La porosité est calculée à partir de la formule suivante :

$$\Phi = \frac{wG}{wG+1} \tag{24}$$

Les échantillons sont placés dans des sachets hermétiquement fermés jusqu'à leur passage à l'étuve. On considère que l'évaporation est nulle durant la conservation et la préparation des échantillons, bien qu'en toute rigueur il serait préférable de les sécher sans attente. La figure 8 et la table 2 représentant les paramètres d'identification des échantillions sont données ci-dessous.



Figure 8 Exemples d'échantillons après l'étuve (les valeurs montrent les pourcentages massiques de l'argile).

Nature et N° du mélange	Proportion Massique d'argile (%) (ramenée sur la masse totale de l'échantillon)	Préparé (jj/mm/aa)	Mis au four (jj/mm/aa)	Teneur en eau massique (%)	Porosité (%)
				w = Pw / Ps	Φ=wG/wG+1
Kaolinite pure 1	68,82	18.05.07	16.07.07	44,20	53,50
Kaolinite +Sable 2	16,94	19.05.07	16.07.07	16,20	30,40
Kaolinite +Sable 3	4,23	21.05.07	16.07.07	16,20	30,40
Kaolinite +Sable 4	0,82	18.07.07	09.08.07	19,00	33,30
Bentonite pure 5	40,80	11.07.07	16.07.07	166,00	82,00
Bentonite+Sable 6	15,00	16.07.07	09.08.07	39,20	50,90
Bentonite+Sable 7	3,90	10.08.07	29.08.07	32,20	46,50
Bentonite+Sable 8	0,83	17.07.07	09.08.07	28,00	43,00
*150C°					
*24h					
*Echantillons concer	vés dans un sac				

Tableau 2 Porosité et la teneur en eau massique des mélanges

D'après *Vacquier et al. (1957),* un chauffage initial d'un mélange argile+sable pouvait changer les phénomènes de polarisation. Donc pour observer ce résultat, nous avons mis la totalité du mélange N°3 (Kaolinite **(4,23%)**+Sable) dans l'étuve le 7 août 2007 sous la température de 150 C⁰ pendant deux jours. Après le chauffage, nous avons resaturé ce mélange avec l'eau déminéralisée en même quantité que précédemment (850,155 gr).

Après une attente suffisante (7 heures) pour que la poudre *kaolinite+sable* arrive à l'équilibre thermique, nous avons procédé à une mesure PPS (en contrôlant l'homogénéité et en conservant le porte-échantillon fermé par un sachet). Les résultats seront présentés dans la suite du rapport.

La valeur de porosité et la teneur en eau massique pour ce mélange sont respectivement de 24,4% et 12,4% (calculé pour la totalité du mélange). Ces valeurs sont donc différentes des précédentes indiquées à la table 2. Le mélange N°3 compact après son passage à l'étuve à la figure 9.



Figure 9 Mélange N° 3 (subi le traitement thèrmique) compact après le passage à l'étuve.

4 APPAREILLAGE ET TECHNIQUE DE MESURE

Pour les mesures réalisées au laboratoire, nous avons utilisé le SIP-FUCHS II qui est un appareil de mesure de la résistivité complexe suivant une large gamme de fréquences (de 0,046 Hz à 12 kHz). Les fréquences intermédiaires sont calculées grâce à la formule suivante : 12 kHz / 2 ^N. Le SIP-FUCHS II est composé de trois parties : L'unité de mesure (base unit), les bobines (remote units) et leurs auto batteries situées à l'intérieur, et les câbles.

L'unité de mesure (base unit) sur la figure 10 se présente sous la forme d'une boite jaune, qui sert d'interface entre les différents composants de mesure, les bobines (remote units), la source du courant de résistance 600 ohm. Elle permet ainsi le prétraitement de signal numérique des séries temporelles.

Le SIP-FUCHS II a deux types de bobines (remote unit) : une bobine pour la mesure du courant (RU0) et une deuxième pour la mesure de la tension (RU1...RU7). Il est possible d'utiliser plusieur bobines pour la mesure de tension mais pour notre dispositif nous avons utilisé RU0 pour la mesure du courant et RU1 pour la mesure de tension. Ces deux types d'unités diffèrent seulement par un détail : la bobine pour la mesure du courant (RU0) mesure le courant en mesurant la chute de tension provoquée par une résistance de shunt dans le circuit.

Troisième composant de l'appareil : les câbles en fibre optique des bobines (remote units), les cables BNC pour la connection des électrodes de courants à RU0 et les câbles de mesure pour la connection des électrodes de potentiels à RU1. Les câbles en fibre optique sont utilisés pour éviter l'effet de couplage généré pendant la transmission des données au niveau du récepteur et de l'émetteur. Cet effet est un problème des mesures électromagnétiques et les câbles en fibre optique tendent à diminuer l'incertitude de mesure. L'utilisation des câbles en fibre optique est surtout important et efficace au terrain pour un dispositif dipôle dipôle. Au laboratoire, même si la distance entre émetteur et récepteur est petite, on essaye d'utiliser des câbles à faible longueur. Parce que si la longueur des câbles est petite donc l'effet de couplage électromagnétique est moins important.

Finalement les données mesurées ($\frac{\Delta V}{I}$) sont transférées à l'unité de mesure où la résistivité apparente et le déphasage sont déterminés *(Radic research).*



Figure 10 Appareillage et technique de mesure.

Un porte-échantillon (colonne) cylindrique en PVC ayant une hauteur de 29,7 cm et un rayon interne de 9,5 cm, de masse 1201,6 g, a été construit en assurant les conditions d'étanchéité. A une hauteur de 5 cm de la base du porte-échantillon nous avons percé quatre trous régulièrement espacés, pour pouvoir y placer les électrodes. Le volume de tous les mélanges a été fixé à 2833.85 cm³ (~une hauteur de 10 cm dans le porte-échantillon). Le mélange est pesé. La température, l'humidité et l'heure sont notés. Les mesures sont effectuées tout de suite après la fabrication des mélanges. Mais avant de commencer, une mesure de résistance pure (pas de déphasage entre le voltage et le courant) est faite pour contrôler la calibration de l'appareil. Celle-ci doit être effectuée pour vérifier les valeurs d'amplitude et de phase (zéro) constantes suivant les différentes résistances.

Les mélanges Kaolinite pure (68,82%), Kaolinite (16,94%)+Sable, Kaolinite (4,23%)+Sable sont mesurés à l'air ambiant et en un jour de mesure. La bentonite pure (40,80%) est mesurée en 5 jours en enfermant le porte-échantillon avec un sachet. La bentonite (15%) +Sable, la bentonite (3,9%)+Sable, la bentonite (0,83%)+Sable, Kaolinite (0,82%)+Sable sont mesurées en 2 jours pareillement en enfermant le porte-échantillon pour conserver les conditions initiales et éviter l'évaporation de l'eau du mélange.

Une deuxième méthode consiste à faire des mesures 4 points en rotation de 45° pour l'observation de l'homogénéité du mélange préparé. Pour ceci, cinq mesures (en répétant la première) ont été prises en changeant la référence des électrodes du courant et du potentiel comme illustré ci-dessous (figure 11). Cette technique est appliquée pour les mélanges suivants : la bentonite pure, la bentonite (15%)+Sable, la bentonite (3,9%)+Sable, la bentonite(0,83%)+Sable, Kaolinite(0,82%)+Sable.



Figure 11 Méthode de mesure pour l'observation de l'homogénéité.

Enfin, si une mesure de même mélange était planifiée le jour suivant, nous gardions le sachet enfermant le porte-échantillon. Dans le cas contraire le contenu était placé dans un autre sachet bien fermé pour en prélever plus tard un échantillon dans le but de définir ses propriétés physiques (comme la teneur en eau et la porosité).

Durant les expériences, un dispositif à 4 électrodes impolarisable de Cu/CuSO4 est utilisé (deux pour l'injection de courant et deux pour la mesure de potentiel). L'utilisation des électrodes impolarisables est très importante pour cette méthode car les électrodes de potentiel ayant des propriétés d'impédance forte ont aussi une grande capacité de polarisabilité. Quand l'électrode a une impédance forte, les ions, responsables de la polarisation électrolytique dans une solution, sont attirés par les électrodes de potentiels et une double couche électrique se génère immédiatement. Alors, le courant qui circule dans le milieu (grace aux ions) devient faible à cause de l'impédance forte des électrodes de potentiels, qui sont en série avec l'impédance du milieu. Le mécanisme de transfert du courant est donc électronique plutôt que électrolytique.

Puisqu'on cherche à caractériser les propriétés d'impédance du milieu, les contributions défavorables des électrodes de potentiel créent des phénomènes parasites. Donc c'est pour cette raison qu'il est préférable d'utiliser les électrodes à impédance faible, impolarisables et stables.

Alors le transfert du courant dans le milieu est plus élevé, la mesure de tension a une précision plus importante que dans le cas précédent et donc la détermination de la résistivité complexe du milieu est plus correcte. Dans la littérature, *Vanhala et Soininen, 1995* ont observé le spectre de phase et d'amplitude d'un échantillon saturé en eau du robinet, mesuré en configuration à deux électrodes. Ils ont montré que le changement de spectre est dû aux différentes propriétés d'impédance des différents types d'électrodes.



Figure 12 Spectre de phase apparente et d'amplitude d'un échantillon saturé en eau du robinet mesuré par une configuration à deux électrodes; Cu-CuSO4, Ag-AgCl, les électrodes en platinum. Densité de courant 0,3.10-2 A/m2 (*Vanhala & Soininen, 1992*).

Pour les électrodes en platinum, qui ont des propriétés d'impédance forte et sont fortement polarisables, on observe une plus grande variation du spectre de phase en fonction de la fréquence que pour les électrodes de Cu/CuSO₄ et Ag/AgCl où le spectre apparait plus stable et présente peu de changement.

5 RESULTATS ET DISCUSSION

Avant de présenter les résultats, il est bon de rappeler les effets d'impédance d'entrée et la capacitance parasite de l'appareil sur les résultats. Pendant les mesures avec une résistance pure (à basse résistance), nous avons observé des effets indépendants des propriétés du matériel mais à l'appareillage pour les hautes fréquences.

SIP-FUCHS II prend en compte la mesure de résistances comprises entre 10 Ω et 10k Ω . Or la résistance de certains mélanges est inférieure à cette impédance minimale d'entrée, les effets dont on vient de discuter sont donc observés sur les données. La figure 13 montre le spectre de phase des différentes résistances pures et le spectre de phase des résistances des mélanges avec la bentonite. On voit bien que la phase devient plus négative pour les résistances faibles à cause de capacitance parasite de l'appareil.



Figure 13 (a) Spectre de phase des différentes résistances pures et effet d'impédance d'entrée et capacitance parasite de l'appareil sur les résultats *(Ghorbani, A.)* (b) spectre de phase des différents résistances des mélanges et les mêmes effets observés.

Les valeurs de phase des mélanges sont tracées en prenant la moyenne de cinq mesures prises dans une journée.

Pour éliminer les effets indésirables, on choisit alors de ne représenter sur les graphes que les mesures obtenues pour des fréquences inférieures à 100 Hz ou 1 kHz, même si les mesures expérimentales ont été réalisées au-delà (jusqu'à 12 kHz) (figures 14-15).

5.1 COMPARAISON DES PROPRIETES EM DES ECHANTILLONS ARGILEUX

Pour comparer deux types d'argile, les spectres d'amplitudes et de phases ainsi que les parties réelles et imaginaires de la conductivité sont tracés en fonction de la fréquence. Ceux des mélanges étudiés en un jour (sans observation de l'homogénéité) sont tracés en utilisant la valeur exacte du paramètre, en fonction de la fréquence.

Pour les mélanges examinés en un jour, avec observation de l'homogénéité accompagnant cinq mesures, la moyenne du paramètre correspondant est calculée sur ces cinq mesures. Pour les mélanges étudiés sur plus d'une journée en observant l'homogénéité, nous avons calculé la moyenne du paramètre correspondant sur cinq mesures de chaque jour et ensuite nous avons calculé la moyenne de la valeur sur les jours d'observation. Sur les graphiques, les changements des valeurs suivant les cinq mesures ou les jours d'observation sont présentés avec la marge d'incertitude.

Sur le spectre d'amplitude de la résistivité complexe pour les mélanges avec la kaolinite, on atteint des valeurs s'étalant de 30 Ω .m à 200 Ω .m. Les valeurs faibles de la résistivité correspondent au grand pourcentage massique de la kaolinite alors qu'avec l'augmentation de la quantité de sable dans le mélange, les valeurs de résistivité deviennent plus élevées. Pour le mélange N° 3 (kaolinite **(4,23%)**+Sable) (représenté en rouge sur la figure 14), contrairement à ce que *Vacquier et al. (1957)* suggéraient (un chauffage initial d'un mélange sable argile pouvait contribuer au tapissage des grains de quartz par les minéraux argileux), nous n'avons pas observé un changement significatif ni sur le spectre d'amplitude ni sur le spectre de phase (figure 14).

Sur le spectre de phase des mélanges avec la kaolinite, les valeurs varient sur un intervalle de 0 mrad à 40 mrad. On observe la même forme de courbe avec une faible différence (polarisation du mélange $N^{\circ}2 \ge N^{\circ}3$) des valeurs de phase pour les mélanges $N^{\circ}2$ et 3 (ayant un pourcentage massique en kaolinite respectivement de **16,94%** et **4,23%**). Pour le mélange $N^{\circ} 4$ (**0,82%** massique en kaolinite), la polarisation n'est pas observée et le résultat d' une mesure de PPS sur un mélange composé de 100% sable saturé est le même. Pour le mélange $N^{\circ} 1$ de **68,82%** massique en kaolinite (juste de la kaolinite saturée sans sable), la polarisation est plus élevée (figure 14).

Sur le spectre d'amplitude de la résistivité complexe des mélanges avec la bentonite, on atteint des valeurs s'étalant de 2 Ω .m à 40 Ω .m. Pareillement aux mélanges avec la kaolinite, les valeurs minimum de résistivité correspondent au grand pourcentage massique de la bentonite (**40.8%**, **15%**) et les valeurs de résistivité deviennent plus élevées avec l'ajout du sable. Pourtant, pour les mêmes quantités d'argiles dans le mélange, il existe une grande différence sur les valeurs de l'amplitude de la résistivité complexe entre deux types d'argiles ($|\rho|_{\text{kaolinite}} > |\rho|_{\text{bentonite}}$). La raison de ce différence est liée à la forte capacité d'échange cationique et capacité d'interaction avec l'eau de la bentonite que la kaolinite (figure 15).

Sur le spectre de phase des mélanges avec la bentonite, pour éliminer l'effet de l'appareillage à haute fréquence des résistances basses, on a coupé à 100Hz (ou moins). Généralement, sur le spectre de phase de la bentonite, les courbes ont une forme commune et les valeurs de phase augmentent avec la fréquence. Mais cette augmentation n'est pas aussi élevée que sur le spectre de phase de la kaolinite (figure 15).

COMPARAISON DES PROPRIETES EM DES ECHANTILLONS ARGILEUX



Figure 14 Spectre d'amplitude et de phase des mélanges préparés avec la kaolinite.



Figure 15 Spectre d'amplitude et de phase des mélanges préparés avec la bentonite.

La partie réelle de la conductivité complexe σ ' des mélanges préparés avec la kaolinite varie de 0,006 S/m à 0,03 S/m. La valeur la plus grande correspond au mélange N° 1 (kaolinite pure saturée sans sable) alors que la valeur minimale correspond au mélange N° 4 (kaolinite (0,82%)+sable).

La partie réelle de la conductivité complexe σ ' des mélanges préparés avec la bentonite varie de 0,03 S/m à 0,5 S/m. Pareillement aux mélanges *kaolinite+sable*, quand le pourcentage massique de la bentonite augmente dans le mélange, la partie réelle de la conductivité complexe devient plus élevée.

Pour les quantités d'argile sensiblement égales, la partie réelle σ ' des mélanges préparés avec la bentonite (figure 17) montre des valeurs plus élevées que celle des mélanges préparés avec la kaolinite (figure 16).

La partie imaginaire de la conductivité complexe σ ["] montre des valeurs supérieures pour les mélanges *bentonite+sable*. L'amplitude de σ ["] est maximum pour les mélanges purement argileux (saturés en eau déminéralisée sans sable).

De plus la partie réelle de la conductivité complexe σ ' ne varie pas avec la fréquence alors que la partie imaginaire σ '' augmente avec la fréquence, cet effet est plus important pour les mélanges qui ont un pourcentage massique élevé en kaolinite.



Figure 16 Spectre de la conductivité réelle et imaginaire des mélanges avec la kaolinite.



Figure 17 Spectre de la conductivité réelle et imaginaire des mélanges avec la bentonite.

5.2 EVOLUTION DE L'AMPLITUDE ET DE PHASE DES MELANGES EN FONCTION DU TEMPS

L'effet de temps de maturation est étudié en mesurant le même mélange quelques jours (deux ou cinq) après la préparation. Les mélanges examinés sont : **Bentonite pure** (40,8%) pendant 5 jours, **Bentonite (15%) +Sable** pendant 2 jours, **Bentonite (3,9%) +Sable** pendant 2 jours, **Bentonite (0,83%) +Sable** pendant 2 jours, **Kaolinite (0,82%) +Sable** pendant 2 jours pour deux fréquences. L'une est à basse fréquence de 0,045766 Hz et l'autre est, relativement, à haute fréquence de 93,75 Hz. On applique la méthode de contrôle de l'homogénéité pour ces mélanges (figure 11). Donc en traçant les graphiques d'amplitude et de phase en fonction du temps, nous avons calculé la moyenne de la grandeur correspondante (soit la phase soit l'amplitude) sur cinq mesures pour chaque jour et ces valeurs sont présentées avec la barre d'erreur pour observer les variations.

L'observation des mélanges permet de voir s'il existe un changement de ces grandeurs et si tel est le cas, de déterminer les phénomènes responsables de ce changement. D'autre part, en sachant les propriétés spécifiques de la bentonite (CEC, argile gonflant..), on peut observer l'évaluation électrochimique avec le temps s'il y a lieu.

Par combinaison des connaissances avec les résultats, il est possible de dire que la variation des valeurs d'amplitude dans une journée dépend de la présence de l'hétérogénéité. Le changement d'amplitude entre les jours d'observation peut correspondre à l'augmentation de l'amplitude de la résistivité complexe associée à l'évaporation de l'eau du mélange. La littérature indique que l'amplitude de la résistivité complexe est sensible au changement de teneur en eau (*Slater et Ulrich 2004, Cosenza et al, 2007*). Ou alors, ce changement peut être généré par la différence de résistance de contact suivant les jours.

L'évaporation de l'eau est aussi responsable du changement (surtout une augmentation) des valeurs de phase associées à l'augmentation des phénomènes de polarisation.

Après une observation de 5 jours, pour la **Bentonite pure (40,8%)** le changement d'amplitude à deux fréquences (0.45766 Hz et 93.75 Hz) ne varie pas de l'un à l'autre. L'amplitude de la résistivité complexe présente une variation minimale de \pm 0,13 Ω .m (premier jour) par rapport aux autre jours et une variation maximale de \pm 0,205 Ω .m (deuxième jour) par rapport aux autres jours.

Par contre, il existe un changement significatif en phase suivant ces deux fréquences. Pour 93,75 Hz la phase présente une variation minimale de \pm 0,11 mrad (deuxième jour) par rapport aux autres jours et une variation maximale de \pm 0,25 mrad (premier jour) par rapport aux autres jours. A 0,045766 Hz, la variation minimale de la phase est de \pm 0,031 mrad (deuxième jour) par rapport aux autres jours et la variation maximale est de \pm 0,054 mrad (cinquième jour) par rapport aux autres jours (figures 18).

Pour le mélange **Bentonite (15%) +Sable** (observation sur 2 jours), le changement d'amplitude à deux fréquences (0,45766Hz et 93,75Hz) ne varie pas de la même façon d'une fréquence à l'autre. L'amplitude de la résistivité complexe présente une variation minimale de \pm 0,14 Ω .m (premier jour) par rapport au deuxième jour et une variation maximale de \pm 0,25 Ω .m (deuxième jour) par rapport au premier jour.

Il existe une différence de variation des valeurs de phase entre les deux fréquences. A 93,75Hz, la phase présente une variation minimale de \pm 0,164 mrad (premier jour) par rapport au deuxième jour et une variation maximale de \pm 0,23 mrad (deuxième jour) par rapport au premier jour. A 0,045766 Hz, la variation minimale de la phase est extrêmement faible, elle est de 0,0044 mrad (deuxième jour) par rapport au premier jour alors que la variation maximale de la phase est de \pm 0,022 mrad (premier jour) par rapport au deuxième jour (figure 19).

Pour le mélange **Bentonite (3,9%) +Sable** (observation sur 2 jours), le changement d'amplitude pour deux fréquences (0,45766 Hz et 93,75 Hz) est semblable. L'amplitude de la résistivité complexe présente une variation minimale de \pm 0,76 Ω .m (deuxième jour) par rapport au premier jour et une variation maximale de \pm 0,82 Ω .m (premier jour) par rapport au deuxième jour.

Pour 93,75Hz la phase présente une variation minimale de \pm 0,064 mrad (deuxième jour) par rapport au premier jour et une variation maximale de \pm 0,066 mrad (premier jour) par rapport au deuxième jour. Pour 0,045766 Hz, la variation minimale de la phase est de \pm 0,02 mrad (deuxième jour) par rapport au premier jour et la variation maximale de la phase est de \pm 0,04 mrad (premier jour) par rapport au deuxième jour (figure 20).

Pour le mélange **Bentonite (0,83%) +Sable** (observation de 2 jours), le changement d'amplitude pour deux fréquences (0,45766 Hz et 93,75 Hz) n'est guère important d'une fréquence à l'autre. L'amplitude de la résistivité complexe présente une variation minimale de \pm 2,44 Ω .m (premier jour) par rapport au deuxième jour et une variation maximale de \pm 2,6 Ω .m (deuxième jour) par rapport au premier jour.

Pour 93,75Hz la phase présente une variation minimale de \pm 0,06 mrad (deuxième jour) par rapport au premier jour et une variation maximale de \pm 0,08 mrad (premier jour) par rapport au deuxième jour. Pour 0,045766 Hz, la variation minimale de la phase est de \pm 0,03 mrad (deuxième jour) par rapport au premier jour et la variation maximale de la phase est de \pm 0,09 mrad (premier jour) par rapport au deuxième jour (figure 21).

Pour le mélange **Kaolinite (0,82%) +Sable** (observation de 2 jours), le changement d'amplitude pour deux fréquences (0,45766 Hz et 93,75 Hz) ne varie pas d'une fréquence à l'autre. L'amplitude de la résistivité complexe présente une variation minimale de \pm 13,53 Ω .m (premier jour) par rapport au deuxième jour et une variation maximale de \pm 15,54 Ω .m (deuxième jour) par rapport au premier jour.

A 93,75 Hz la phase présente une variation minimale de \pm 0,225 mrad (deuxième jour) par rapport au premier jour et une variation maximale de \pm 0,505 mrad (premier jour) par rapport au deuxième jour. Pour 0,045766 Hz, la variation minimale de la phase est de \pm 0,022 mrad (deuxième jour) par rapport au premier jour et la variation maximale de la phase est de \pm 0,031 mrad (premier jour) par rapport au deuxième jour (figure 22).

En conclusion, le changement d'amplitude pour l'ensemble des mélanges discutés cidessus ne montre pas de variation importante suivant la fréquence. Les variations minimales et maximales de l'amplitude sont réparties entre le premier et deuxième jour tout en étant négligeables (proches de zéro). Seulement pour le mélange **Bentonite (0,83%) +Sable** les variations d'amplitude de la résistivité complexe sont de l'ordre de ~ \pm 2,5 Ω .m. Le changement d'amplitude pour le mélange **Kaolinite (0,82%) +Sable** prend néanmoins une valeur importante de l'ordre de ~14 Ω .m. La variation des valeurs de phase par jour pour l'ensemble des mélanges discutés diffère suivant la fréquence. Mais ces variations ne sont pas élevées (quasi nulles). Les variations de la phase en fonction de temps est dans la barre d'erreur de mesure de l'appareil (~ 1mrad).

Nous avons également représenté la partie réelle et imaginaire de la conductivité complexe des mélanges pour deux fréquences (0,45766 Hz et 93,75 Hz) en fonction du pourcentage massique de l'argile du mélange (figures 23-24).

EVOLUTION DE L'AMPLITUDE ET DE PHASE DES MELANGES EN FONCTION DU TEMPS



Figure 18 Evolution de l'amplitude et de phase du mélange N° 5 (Bentonite pure (40,8%)) pour une période de 5 jours.



Figure 19 Evolution de l'amplitude et de phase du mélange N° 6 (Bentonite (15%)+Sable) pour une période de 2 jours.



Figure 20 Evolution de l'amplitude et de phase du mélange N° 7 (Bentonite (3,9%)+Sable) pour une période de 2 jours.



Figure 21 Evolution de l'amplitude et de phase du mélange N° 8 (Bentonite (0,83%)+Sable) pour une période de 2 jours.



Figure 22 Evolution de l'amplitude et de phase du mélange N° 4 (Kaolinite (0,82%)+Sable) pour une période de 2 jours.



Figure 23 Conductivité réelle et imaginaire de deux types d'argile en fonction du pourcentage massique à 93,75 Hz.



Figure 24 Conductivité réelle et imaginaire de deux types d'argile en fonction du pourcentage massique à 0,045776 Hz.

Pour une interprétation correcte, il faut aussi tenir compte du temps d'observation et des mesures de contrôle de l'homogénéité. En dehors du mélange N° 4 (kaolinite **(0,82%)** +Sable), la valeur de phase des mélanges N° 1, 2, 3, de pourcentages massiques respectifs en kaolinite **68.82%**, **16.94%**, **4.23%**, correspond à une seule mesure qui n'a pas été répétée un autre jour, et sans contrôle de l'homogénéité (accompagnant cinq mesures). C'est pour cette raison que les valeurs sont présentés sans barre d'erreur ; l'interprétation doit être faite en tenant compte de ces connaissances (figures 15-16-23-24-25).

La partie réelle de la conductivité complexe σ ' ne montre pas de variation significative avec la fréquence en fonction du pourcentage d'argile. L'ajout d'argile fait augmenter progressivement les valeurs de la conductivité réelle σ ' pour les deux types d'argile (la kaolinite et la bentonite). Cette augmentation est plus significative pour les mélanges *bentonite+sable* (figure 23-24).

Par contre, la dépendance fréquentielle de la partie imaginaire de conductivité complexe σ '' existe. La figure 25 représente cette dépendance pour deux types d'argile.



Figure 25 Dépendance fréquentielle de σ '' pour deux types d'argile à deux fréquences.

L'ajout d'argile favorise l'augmentation du paramètre σ " pour les mélanges préparés avec la kaolinite (en tenant compte du temps d'observation et des mesures pour le contrôle de l'homogénéité). Pour les mélanges préparés avec la bentonite, la variation du paramètre correspondant (σ ") est très variable donc on ne peut pas exactement parler d'une augmentation ou d'une diminution en fonction du pourcentage massique en bentonite. Mais il est possible de dire que à 93,75 Hz (figure 23 ou bien 25) pour un pourcentage massique en bentonite de 15% (mélange N° 6), le changement de σ " est plus élevé par rapport au changement des autres mélanges. Il atteint soit une valeur minimale soit une valeur maximale par rapport aux autre mélanges préparés avec la bentonite ayant des pourcentages massiques différents.

5.3 CONTROLE DE L'HOMOGENEITE

On peut contrôler l'homogénéité par l'observation de la dispersion des données grâce aux mesures répétitives. Les cinq mesures sont réalisées à partir des mesures 4 points en rotation de 45°. D'après les résultats donnés sur les figures 26-27-28-29-30, la dispersion des données n'est pas élevée. Donc les mélanges sont homogènes. Pour les pourcentages massiques de la bentonite dans le mélange (3,90% et 0,83%) (Figures 28-29) ne montrent pas de dispersion par rapport à la figure 30. Alors d'après ce résultat et l'observation au cours de la préparation, on peut dire que la kaolinite se disperse moins bien dans le mélange que la bentonite.

Pour les mélanges contenant de grandes quantités de sable, le problème de résistance de contact apparaît dû à la grandeur de la taille des grains de sable par rapport à celle des grains d'argile.

En dehors du contrôle d'homogénéité, les valeurs de phase sont importantes pour vérifier les problèmes de l'appareil à haute fréquence des résistances basses comme l'impédance d'entrée et la capacitance parasite. Les mélanges sur les figures 26-27 sont plus affectés par ces phénomènes que les autres à cause de leur résistance basse (~4,44 Ω et ~7,77 Ω). Même si la variation de phase est faible (moins que 1mrad), les résultats ne sont pas interprétables car on se situe dans la gamme de sensibilité de l'appareil.

CONTROLE DE L'HOMOGENEITE



Figure 26 Contrôle de l'homogénéité pour le mélange N° 5 (Bentonite pure (40,80%)).



Figure 27 Contrôle de l'homogénéité pour le mélange N° 6 (Bentonite (15%) +Sable).



Figure 28 Contrôle de l'homogénéité pour le mélange N° 7 (Bentonite (3,90%) +Sable).



Figure 29 Contrôle de l'homogénéité pour le mélange N° 8 (Bentonite (0,83 %) +Sable).



Figure 30 Contrôle de l'homogénéité pour le mélange N° 4 (Kaolinite (0,82 %) +Sable).

.....

CHAPITRE 3 UTILISATION DU LOGICIEL COMSOL MULTIPHYSICS

.....

1 INTRODUCTION A LA MODELISATION AVEC COMSOL MULTIPHYSICS

Pour la modélisation, on utilise le logiciel COMSOL Multiphysics version 3.2 (nommé premièrement "Femlab" en 1999). Ce logiciel est un environnement intéractif pour la modélisation et la simulation de phénomènes scientifiques et industriels, basé sur les équations aux dérivées partielles. Pour résoudre ces équations, Comsol Multiphysics utilise la méthode des éléments finis.

Dans COMSOL Multiphysics, nous avons travaillé avec une géométrie en 2D, module d'électromagnétique au mode d'application quasi-statique électrique « *in plane electric currents* « l'analyse harmonique de temps.

Les modes quasi-statiques conviennent pour les simulations de structures avec une grandeur électrique suivant une gamme jusqu'à 1/10. L'hypothèse physique est que les courants et les charges produisant les champs électromagnétiques varient si lentement avec le temps que les champs électromagnétiques sont pratiquement les mêmes à chaque instant, comme s'ils avaient été produits par des sources stationnaires. Pour les problèmes quasi-statiques à faible valeur de courant, le couplage entre le champ magnétique et électrique est négligeable *(comsol)*.

En mode d'application *"inplane electric currents"* le courant est justement présent au surface.

Quand il existe des variations en temps, deux approches principales pour représenter la dépendance au temps sont possibles. La plus connue consiste à résoudre le problème en calculant les changements de solution pour chaque étape de temps. Mais ceci nécessitera beaucoup de temps de calcul.

Une simplification efficace doit supposer que toutes les variations en temps se génèrent comme les signaux sinusoïdaux. Alors le problème est harmonique en temps et il est possible de le formuler comme un problème stationnaire avec les solutions complexes. Pour les problèmes non linéaires il est préférable d'utiliser une analyse harmonique de temps après une linéarisation du problème, qui suppose que la distorsion du signal sinusoïdal est petite *(comsol)*.

2 ETAPE DE MODELISATION

La modélisation comprend plusieurs étapes : la création de la géométrie, le réglage des paramètres de maillage, la définition des équations et des conditions aux limites, ensuite la résolution du problème et finalement le post-traitement.

 $\sqrt{}$ La première étape de modélisation consiste en la création d'une géométrie en 2D ou en 3D. Durant les manipulations avec COMSOL Multiphysics, sur une géométrie en 2D, un cercle de rayon de 0.1 m est choisi pour créer un parallélisme entre la forme du porteéchantillon utilisé durant les expériences et la modélisation en 2D. Mais cette préférence a créé des inconvénients en terme de régularité de dispersion des lignes de courants.

 $\sqrt{}$ La deuxième étape est le maillage. Nous avons utilisé les valeurs par défaut pour le maillage. Ces valeurs sont indiquées à la figure 31.

oal Subdomain Boundary Point	Advanced	
Global mesh parameters		
Predefined mesh sizes:	Normal	-
Maximum element size:		
Maximum element size scaling factor:	1	
Element growth rate:	1.3	
Mesh curvature factor:	0.3	
Mesh curvature cut off:	0.001	
Resolution of narrow regions:	1	1
Mesh geometry to level:	Subdomain	+

Figure 31 Paramètres de maillage.

 $\sqrt{}$ La troisième étape consiste à définir les équations. Dans COMSOL Multiphysics, les équations sont déjà définies mais il est possible d'en ajouter de nouvelles. La formulation des équations aux dérivées partielles au mode *quasi-statique* \rightarrow *les courants électriques* \rightarrow *analyse harmonique de temps* est décrite par la formule suivante :

$$-\nabla d\left(\!\left(\sigma + j\omega\varepsilon_0\right)\!\nabla V - \left(J^e + j\omega P\right)\!\right) = dQ_j$$
(25)

Où J_e est la densité de courant externe (A/m²). Q_j est le courant (A/m³), d est l'épaisseur (m). La relation constitutive de cette équation est décrite par la formule suivante :

$$D = \varepsilon_0 E + P \tag{26}$$

 $\sqrt{}$ La définition des conditions aux limites constitue la quatrième étape.

Pour les modèles créés, les bords du grand cercle sont choisis *"l'isolation en électrique"* dans le menu qui signifie l'absence de déplacement électrique à l'extérieur des bords et est décrite par la relation suivante.

$$n.J = 0 \tag{27}$$

Cette condition de limite rend nulle la composante normale des courants électriques. Une autre condition aux limites pour les bords est *"la continuité"* laquelle est définie pour les cercles placés dans le grand cercle. Ce choix est fait pour la simplification des phénomènes (pas de création de double couche électrique) et pour éviter l'accumulation des charges sur ces bords-là. La condition est décrite par la relation suivante et signifie que la composante normale du courant électrique est en continuité à travers la frontière intérieure.

$$n.(J_1 - J_2) = 0 \tag{28}$$

"Le potentiel électrique" est une autre condition aux limites utilisée pour définir les deux sources de courants. Elles sont décrites par un potentiel exprimé en Volt signifiant la tension sur les bords. La formulation est donnée par :

$$V = V_0 \tag{29}$$

3 CALCUL DU COEFFICIENT GEOMETRIQUE A L'AIDE DU LOGICIEL

Le calcul du coefficient géométrique à l'aide du logiciel COMSOL Multiphysics est fait à partir de la géométrie $3D \rightarrow COMSOL$ Multiphysics $\rightarrow Electromagnetics \rightarrow Conductive Media DC.$

L'équation définitive des paramètres physiques de ce mode d'application est décrite par la formule suivante :

$$-\nabla \left(\sigma \nabla V - J^e \right) = Q_j \tag{30}$$

Où σ est la conductivité électrique (S/m), J^e est la densité du courant à l'extérieur (A/m²), Q_i est la source du courant (A/m³).

Ce modèle est créé pour le calcul du coefficient géométrique pour le dispositif utilisé durant les mesures de laboratoire. Il est constitué de deux cylindres superposés, d'une hauteur de 0.05 m chacun et d'un rayon de 0.1 m. La résistivité du milieu est prise à 1 Ω .m (conductivité de 1 S/m) et il existe deux sources de courant de +1 A et -1 A au niveau du point d'intersection des deux cylindres, avec une intervalle de 45°, aux coordonnées (-0.1, 0, 0.05) et (0, -0.1, 0.05).

Tous les bords sont choisis en isolation électrique (n.J = 0) et la surface d'intersection des deux cylindres avec le milieu est supprimée.



Figure 32 Modèle pour le calcul du coefficient géométrique.

Une fois que tout est réglé, nous exportons les valeurs de potentiel électrique pour les points correspondants M et N du dispositif utilisé pendant les mesures expérimentales (placés en face des points de source de courant). Les paramètres connus pour définir le coefficient géométrique sont suffisants. Donc à partir de la formule;

$$\rho = k \frac{\Delta V}{I} \tag{31}$$

le coefficient géométrique du dispositif est calculé et vaut ici 0,45.

4 CREATION DES MODELES ET RESULTATS

Durant les applications sur COMSOL Multiphysics six modèles ont été travaillés pour approcher à un modèle réel du milieu. Le milieu réel de nos expériences peut être défini comme un espace poreux saturé et constitué des grains d'argile ou bien de l'ensemble des grains d'argile et du sable. Il existe certains paramètres à considérer pour la création des modèles : le nombre des grains, la taille des grains, la forme des grains, la distance entre les grains et la conductivité réelle, la permittivité relative du milieu et des grains. Pour les modèles créés, le nombre de grains n'était pas suffisamment élevé et leur taille n'était pas assez petite pour définir les vrais paramètres des mélanges préparés. Donc dans cette partie, nous présenterons des modèles simples qui servent à comprendre l'utilité et les possibilités du logiciel pour le problème posé. Nous avons joué sur les paramètres comme la porosité, le nombre des grains, la taille des grains et leurs distributions. Le module choisi sur COMSOL Multiphysics ne correspondait à aucune équation physique dépendant de la fréquence. Donc nous avons répété la modélisation pour quatre fréquences (1,464844 Hz, 187,5 Hz, 12 kHz, 10000 kHz) par modèle créé. La fréquence est définie à chaque itération à l'aide du menu « *Physics* \rightarrow *Scalar variables* « Les figures suivantes 33-34-35-36-37-38 montrent les six modèles examinés.



Figure 33 Modèle N° 1.



Figure 34 Modèle N° 2.



Figure 35 Modèle N° 3.



Figure 36 Modèle N° 4.



Figure 37 Modèle N° 5.



Figure 38 Modèle N° 6.

Sur les figures 33-34-37-38, le modèle N° 5 avec N° 1 et N° 6 avec N° 2 ont les mêmes propriétés mais une distribution différente. La forme de tous les grains est un cercle et la distance entre les cercles est nulle pour les modèles N° 1-3 (Interaction) et quasiment nulle pour N°5 (Interaction+pas d'intéraction) et pour les autres, les distances sont très petites. Il n' existe pas d'intersection entre les cercles. La table suivante (3) fournit toutes les propriétés de ces modèles.

Tableau 3 Propriétés des modèles

	Porosité (%)	Nombre de grains	Rayon des grains (m)	Conductivité réelle (S/m) Permittivité relative du milieu	Conductivité réelle (S/m) Permittivité relative des cercles
Modèle N° 1	40	60	0.010	σ'_m =0.024 ${\mathcal E}_{R_m}$ =80.25	σ_c =0.01 $arepsilon_{Rc}$ =3.5
Modèle N° 2	40	250	0.005	$\sigma'_{m} = 0.024$ $\mathcal{E}_{R_{m}} = 80.25$	σ_c =0.01 ε_{R_c} =3.5
Modèle N° 3	80	20	0.010	$\sigma'_{m} = 0.024$ $\mathcal{E}_{R_{m}} = 80.25$	σ_c =0.01 ε_{R_c} =3.5
Modèle N° 4	80	83	0.005	$\sigma'_{m} = 0.024$ $\mathcal{E}_{R_{m}} = 80.25$	σ_c =0.01 ${\cal E}_{R_c}$ =3.5
Modèle N° 5	40	60	0.010	σ'_m =0.024 \mathcal{E}_{R_m} =80.25	σ_c =0.01 $arepsilon_{Rc}$ =3.5
Modèle N° 6	40	250	0.005	$\sigma'_{m} = 0.024$ $\mathcal{E}_{R_{m}} = 80.25$	σ_c =0.01 $arepsilon_{R_c}$ =3.5

Pour toutes ces modèles, les bords du grand cercle sont isolés en électrique (n.J = 0) et les bords des petits cercles l'intérieurs sont choisis *"la continuité"* dans le menu. Deux sources sont définies en potentiel de +100 V et -100 V aux coordonnées respectives (-0.1, 0) et (0, -0.1).

Les figures suivantes 39-40-41-42-43-44 montrent les résultats de modélisation en potentiel et en lignes de courant à 187,5 Hz pour chaque modèle.



Figure 39 Résultat de la modélisation du modèle N° 1.



Figure 40 Résultat de la modélisation du modèle N° 2.



Figure 41 Résultat de la modélisation du modèle N° 3.



Figure 42 Résultat de la modélisation du modèle N° 4.



Figure 43 Résultat de la modélisation du modèle N° 5.



Figure 44 Résultat de la modélisation du modèle N° 6.

Pour avoir la valeur du courant émis pour chaque modèle à chaque fréquence on utilise « *Postprocessing*→ *Cross section Plot Parameters* ». Il apparait donc une fenêtre dans le logiciel où on choisi la densité de courant total (à choisir parmi d'autres paramètres) en fonction de la distance (à choisir parmi les autres paramètres) pour une coupe comme suit à la figure 45.



Figure 45 Illustration de la section prise pour le calcul du courant.

Les valeurs de densité du courant total sont ensuite exportées dans un fichier. La surface en dessous de la courbe est calculée pour avoir la valeur du courant à chaque fréquence.

Le menu « Postprocessing \rightarrow Point Evaluation » sert à donner la valeur du potentiel en un point choisi. Ce menu est utilisé pour avoir la différence des potentiels (ΔV) aux points (0, 0.1) et (0.1, 0). Il fallait aussi penser à calculer le nouveau coefficient géométrique (k) pour le nouveau dispositif (un cercle). Pour avoir la valeur du coefficient géométrique nous avons procédé de la même manière que précédemment (voir page 48-49) on trouve une valeur de 4,532. Une fois que tous les paramètres sont connus (courant, ΔV , k) il est possible de définir les résistivités réelle et imaginaire donc les conductivités réelle et imaginaire ou les permittivités réelle et imaginaire selon le choix.

La figure 46 montre la conductivité réelle et imaginaire des modèles créés en fonction des fréquences étudiées.



Figure 46 Spectre de conductivité réelle et imaginaire des modèles créés.

D'après ces résultats, à partir de 10 kHz on observe l'augmentation des valeurs réelles de conductivité pour tous les modèles. Pour la partie imaginaire tous les modèles ont tendance à augmenter avec la fréquence alors que pour le modèle N° 1 on observe une diminution à 10 kHz. De plus, mis à part le modèle N° 1, les valeurs imaginaires de conductivité des autres modèles ne diffèrent pas de l'un à l'autre.

Pour les modèles générés, les changements de la structure n'étaient pas suffisants pour créer une différence significative sur la partie réelle ou imaginaire de la conductivité (comparaison modèle N° 2-6 et modèle N° 1-5). Pourtant, pour les modèles qui ont une taille de grains semblable, une porosité et un nombre de grains différents (cas des modèles N° 1-3, N° 2-4, N° 3-5, N° 4-6), il existe une différence de valeurs de la conductivité réelle.

Dans le cas des modèles qui ont la même porosité, un nombre de grains et une taille des grains différents (modèles N° 1-2, 1-6, 2-5, 3-4) les valeurs de la conductivité réelle sont assez proches.

En conclusion, d'après les modèles dont on dispose, en gardant les mêmes valeurs de conductivité réelle et de permittivité relative du milieu et pour les mêmes valeurs de conductivité réelle et de permittivité relative des grains, il est plus efficace de jouer sur le changement de la porosité et le nombre des grains (pour une taille de grain fixe) pour créer une variation des valeurs de la conductivité réelle entre les modèles créés que de faire varier le nombre et la taille des grains (pour une porosité fixe).

5 ILLUSTRATION D'EFFET DE MAXWELL-WAGNER

Pour discuter de l'effet Maxwell Wagner, considérons le modèle N°1 (interaction entre les cercles). Ce modèle représente un milieu hétérogène et poreux (40% porosité) et il est formé de deux phases de propriétés diélectriques différentes (la permittivité relative du milieu est plus élevée). Les permittivités relatives du milieu et des cercles, les conditions aux limites sont conservées (\mathcal{E}_{R_m} =80.25, \mathcal{E}_{R_c} =3.5) mais on prend une valeur de conductivité réelle du milieu égale à 0.1 S/m et une valeur de 0.001 S/m pour les cercles. Donc le milieu est plus conducteur (comme il contient une solution d'électrolyte) et les lignes de courant ont tendance à parcourir dans le milieu au lieu de sur les cercles résistants sous l'effet d'un champ électrique.

L'effet de Maxwell Wagner est important pour les basses fréquences (supérieures à 10³ et inférieures au kHz). On étudie les phénomènes aux deux fréquences extrêmes, 1 Hz et 12kHz. Les courbes de densité de courant totale et de densité des courants de déplacement sont observés sur deux sections : une horizontale et une inclinée. Nous avons observé des pics correspondant à l'interface des cercles suivant la section, sur toutes les figures (47-48-49-50). L'intervalle de ces pics correspond au diamètre des cercles. Sur les figures (47-49) on voit bien qu'à 1 Hz, les courants de conduction (contribution des charges libres) sont importants (faibles valeurs de la densité des courants de déplacement) alors que sur les figures (48-50), à 12kHz les courants de déplacement (contribution des charges liée) sont importants. A 1Hz, les valeurs faibles de la densité des courants de déplacement sont accompagnées par des anomalies positives qui dépendent de propriétés diélectriques différentes. A haute fréquence (12kHz), les valeurs plus élevées de la densité des courants de déplacement sont aussi accompagnées par des anomalies positives qui dépendent de propriétés diélectriques différentes. Sur une autre section, cette fois-ci inclinée, toutes les remarques précédentes restent valables, mais les amplitudes des anomalies correspondant aux interfaces sont moins faibles. L'effet de Maxwell Wagner est donc plus fort pour un plan parallèle à la ligne de courant.



Figure 47 Modèle N° 2 à 1Hz, courbe de la densité de courant totale et courbe de la densité des courants de déplacement.



Figure 48 Modèle N° 2 à 12kHz, courbe de la densité de courant totale et courbe de la densité des courants de déplacement.



Figure 49 Modèle N° 2 à 1Hz, coupe 2, courbe de la densité de courant totale et courbe de la densité des courants de déplacement.



Figure 50 Modèle N° 2 à 12kHz, coupe 2, courbe de la densité de courant totale et courbe de la densité des courants de déplacement.

Outre les modèles discutés précédemment, un autre modèle est créé pour observer la distribution des lignes de courants et les phénomènes associés. Pour ce modèle un rectangle possédant une épaisseur de 0.4 m et une longueur de 0.8 m est généré. On augmente le nombre de grains (petits cercles de rayon 0,01 m) jusqu' à 741. La porosité est de 27,25%. La conductivité réelle et la permittivité relative du milieu et des grains (des

cercles) sont définis comme précédemment (σ_m =0.024, \mathcal{E}_{R_m} =80.25, σ_c =0.01, \mathcal{E}_{R_c} =3.5).

Pour ce modèle l'interaction des cercles est bien réglée. Pour la condition aux limites des bords des grains dans le menu « *la continuité* », pour les deux surfaces (pas un point comme les autres modèles) verticales du rectangle « *potentielle en électrique* » de +1 V et - 1V, et pour les autres surfaces horizontaux du rectangle « *isolation en électrique* » sont définis. Les figures 51 et 52 montrent la géométrie du dernier modèle et le résultat de modélisation à 1 Hz.



Figure 51 Modèle N° 7.







Figure 53 Modèle N° 7 à 1Hz courbe de la densité de courant totale et de la densité des courants de déplacement.

La figure 53 montre la densité de courant totale et des courants de déplacements pour le modèle N° 7 à 1Hz. En plus de l'observation des mêmes phénomènes (figures 47-48-49-50) on y observe l'effet de la distribution des lignes de courants sur la régularité des amplitudes de la densité de courant totale et de la densité des courants de déplacements. Pour les figures 47-48-49-50 l'amplitude des anomalies n'était pas égale.

CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES

L'étude expérimentale que nous avons mené permet d'avancer les résultats suivant:

- A proportion d'argile sensiblement égale la partie réelle σ' des mélanges bentonite+sable est beaucoup plus élevée que celle des mélanges kaolinite+sable. La raison de cette différence peut s'expliquer par la nature minéralogique des argiles étudiées. La forte capacité d'échange cationique (CEC) de la bentonite explique cette différence.
- 2. Concernant la dépendance fréquentielle, la partie réelle σ' ne montre pas une variation important en fonction la fréquence.
- 3. La partie imaginaire de la conductivité σ'' atteint à des valeurs plus élevée pour les mélanges *bentonite+sable* par rapport aux mélanges *kaolinite+sable*. L'amplitude des phénomènes de polarisation est donc plus grande en présence de montmorillonite : ces phénomènes de polarisation seraient donc liés à la CEC et/ou à l'organisation texturale particulière qu'elle possède.
- 4. L'amplitude de σ " est maximum pour les mélanges purement argileux (sans sable, saturé).
- 5. Sur le spectre du paramètre σ' pour deux types d'argile la forme des courbes sont pareils (augmentent avec la fréquence). Cette augmentation est plus importante pour les matériaux riches en kaolinite.
- 6. Le résultat du traitement thermique a montré que contrairement Vacquier et al. (1957) suggéraient, nous n'avons pas observé une modification du spectre de la conductivité imaginaire après un chauffage à 150°C pendant 48 heures du mélange N°3 (kaolinite (4,23%) +sable). On peut expliquer ce résultat soit par l'inutilité du traitement (il ne crée pas une modification sur l'organisation spatiale des différentes phases) ou soit par l'indépendance des phénomènes de polarisation de l'organisation spatiale.
- 7. Le suivi sur 5 jours de certains mélanges ne montre pas d'évolution significative de la réponse PPS. Sur cette période de temps, il n'existe donc pas de réactions électrochimiques qui auraient pu modifier les propriétés électriques complexes mesurées.

Concernant le volet théorique, nous avons cherché à calculer une propriété électrique effective de nature complexe en jouant sur la taille et le nombre de grains élémentaires du géomatériau. Cette étude n'a pas encore abouti mais les résultats préliminaires obtenus illustrent la forte amplitude des courants de déplacement existant aux contacts des grains élémentaires.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

Chouteau, M., Méthodes électriques, Notes de cours: <u>http://www.cours.polymtl.ca/glq3202/Electrique/node72.html</u>

Comparon, L., 2005, Etude expérimentale des propriétés électriques et diélectriques des matériaux argileux consolidés, Thèse de doctorat de l'Institut de Physique du Globe de Paris, p. 26.

Cosenza, P., Ghorbani, A., Ruy S., Doussan, C., Florsch, N., 2007, Noninvasive monitoring of water infiltration in a silty clay loamy soil using spectral induced Polarization.

Chelidze, T. L., Guéguen, Y., 1999, Electrical properties of porous rocks : a review –I.Theoretical models, *Geophys. J. Int.*, vol. **137**, p.1-15

Ghorbani, A., 2007, Contribution au développement de la résistivité complexe et à ses applications en environnement, Thèse de doctorat de l'université Pierre et Marie Curie, p1.

Grim, R.E., 1968. Clay Mineralogy, 2nd ed., McGraw-Hill, New York, 596 pp.

Guéguen Y., Palciauskas V. 1992, Introduction à la physique des roches, Edition Hermann.

Guide d'utilisateur du module électromagnétique (Comsol).

lliceto, V., Santarato, G., and Veronese, S., 1982, An approach to the identification of fine sediments by induced polarization laboratory measurements: *Geophys. Prosp.*, **30**, p.331-347.

Knight, R., and Endres, A., 2003, Introduction to rock physics for near surface applications in the near-surface geophysics, 1,SEG,.

Knight, W.C., 1898. Bentonite, The Engineering and Mining Journal 66, 491.

Lesmes, D. P., and Frye, K. M., 2001, The influence of the pore fluid chemistry on the complex conductivity and induced-polarization responses of Berea Sandstone: *J. Geophys. Res.*, **106**, No. B3, p.4079-4090.

Olhoeft, G.R., 1976, Electrical properties of rocks: *The Physics and the Chemistry of the minerals and Rocks* (Strens, R.G.J., Editor), Wilsons and Sons, England, p.261-278

Olhoeft, G.R., 1979, Electrical properties : Initial Report of the Petrophysics Laboratory, U.S. Geological Survey Circular 789, Reston, VA, p.1-24.

Pelton, W. H., Sill, W. R. and Smith, B. D., 1983, Interpretation of complex resistivity and dielectric data. Part I: Geophysical Transactions, **29**, 297-330.

Radic Research, Complex electrical resistivity field measuring equipment SIP-FUCHS-II: http://www.radic-research.de/Flyer_SIP-Fuchs_II_151104.pdf

Slater, L., and Ulrich, C., 2004, Induced polarization measurements on unsaturated, unconsolidated sands : *Geophysics*, **69**, No.3, p.762-771.

Slater, L., and Lesmes, D. P., 2002, Electrical-hydraulic relationships observed fot the uncolidated sediments: *Water Resources Research*, **38**, No.10, 31-1 to 31-10.

Ward, S. H., Fraser D., 1967, Conduction of electrecity in rocks: *Mining Geophysics,* V.2, 197-223, Soc.Expol.Geophys.

Vacquier V., Holmes C.R., Kintzinger P.R. and Lavergne M.1957, Prospecting for ground water by induced electrical polarization. *Geophysics* 23, 660-687.

Vanhala, H., and Soininen, H., 1995, Laboratory technique for measurement of spectral induced polarization response of soil samples: *Geophys. Prosp.*,**43**, p.655-676

Vinegar, H. J., and Waxman, M. H., 1984, Induced polarization of shaly sands: Geophysics, 49, p.1267-1287.

http://fr.ekopedia.org/Argile#Les_diff.C3.A9rents_argiles http://mmsd1.mms.nrcan.gc.ca/minerals/Min/bentonitef.htm http://membres.lycos.fr/cambrien/kaolins.htm