



L'eau interstitielle de l'argile sensible: extraction et analyse

Benabdallah, El Mehdi

Département des génies civil, géologique et des mines – École Polytechnique de Montréal, MTL, QC, Canada

Chapuis, Robert P., François Réginensi

Département des génies civil, géologique et des mines – École Polytechnique de Montréal, MTL, QC, Canada

RESUME

On connaît mal les mouvements très lents de l'eau interstitielle dans une argile sensible, telle l'argile Champlain de la vallée du Saint-Laurent. Compte tenu des nombreux projets où l'argile peut être utilisée comme barrière d'étanchéité, une meilleure connaissance de la migration des eaux et des ions est requise. Différentes publications ont décrit diverses techniques pour extraire l'eau interstitielle de tout type de sédiment. Il n'existe cependant pas de normes pour réaliser cette extraction. Cependant, comme les conditions d'extraction modifient les conditions de pression, contrainte et gradient hydraulique, elles doivent influencer la qualité chimique de l'eau récupérée. L'article décrit un appareil d'extraction d'eau interstitielle conçu pour une argile sensible. Cet appareil permet d'extraire les volumes d'eau requis pour effectuer diverses analyses chimiques et isotopiques. Les tests réalisés ont fourni des informations sur les pressions d'extraction à utiliser pour ne pas influencer la qualité de l'eau, et recueillir une eau représentative de l'eau interstitielle in situ. L'article présente ensuite la variation des concentrations des ions majeurs et des isotopes de l'eau interstitielle extraite d'un dépôt d'argile Champlain, en fonction de la profondeur de l'échantillon. Ces données ont permis de tirer plusieurs conclusions sur l'âge relatif de l'eau dans l'argile, et sur les très lents mouvements de l'eau interstitielle.

ABSTRACT

The movements of the clay pore water and major ions in sensitive clay, like the Champlain clay from Saint-Lawrence Valley are not well known. A better knowledge of the process of migration of water and ions is a prerequisite to all the projects actually held in the field of hydrogeology and many other civil engineering studies. Different technical publications described the different techniques used by the authors in order to extract the pore water from different kind of sediments. The article describes an apparatus conceived in order to extract pore water from sensitive clay. The volumes of water obtained are sufficient to carry out various chemical and isotopic analyses. The tests provided information on the pressures to be used for the extraction of water from sensitive clays without influencing the water chemistry and that permits to collect representative samples of the pore water. The paper also presents then the variation of the concentrations of the major ions and the isotopes of pore water extracted from the Champlain clay in function of the depth of the sample. These data allowed drawing several conclusions about the relative age from water in clay and on the very slow movements of pore water.

1 INTRODUCTION

La bonne connaissance du mouvement des ions majeurs et de l'eau interstitielle dans une argile sensible est devenue primordiale compte tenu des nombreux projets où l'argile est utilisée comme barrière d'étanchéité et aussi pour expliquer divers phénomènes géotechniques. Cela passe par une analyse chimique de l'eau interstitielle de l'argile et la caractérisation de ses constituants chimiques. A ce jour, il n'existe pas encore de norme régissant l'extraction de l'eau interstitielle de l'argile malgré la multitude de recherches conduites dans le domaine de l'hydrogéologie, l'hydrogéologie chimique et la géochimie. Plusieurs chercheurs ont utilisé des techniques pour répondre à leurs propres besoins sans pour autant mettre au point un dispositif standard et une procédure détaillée pour extraire l'eau interstitielle de l'argile. Dans cet article, les auteurs décrivent le procédé mis au point dans leur laboratoire pour extraire des échantillons représentatifs d'eau interstitielle à partir de cylindres d'argile, les tests réalisés pour valider ce dispositif et quelques résultats obtenus pour une argile Champlain.

2 L'EXTRACTION D'EAU INTERSTITIELLE DES SÉDIMENTS DANS LA LITTÉRATURE

Plusieurs articles apparus dans la littérature scientifique traitent de méthodes d'extraction d'eau interstitielle de différents types de sédiments. Ortega et al. (1996) ont extrait l'eau interstitielle en comprimant l'argile avec une presse hydraulique. Le dispositif expérimental est décrit en détail par Patterson et al. (1978). Un volume de 150 mL d'eau est ainsi obtenu à partir d'un échantillon d'argile. Une seringue stérilisée est directement connectée au dispositif d'extraction d'eau pour éviter tout contact de l'eau avec l'atmosphère. L'eau obtenue est filtrée et acidifiée pour les analyses de cations.

Une étude réalisée par l'OCDE (2000) traite de l'extraction de l'eau interstitielle des roches argileuses pour fins de caractérisation géochimique. En premier lieu, l'emphase est mise sur le système argile/eau. En effet, il existe une interaction entre différentes composantes du système : les minéraux argileux, les ions dissous, les molécules d'eau et la matière organique. Des liaisons chimiques de différentes forces et énergies existent entre toutes ces espèces. Lors de l'extraction de l'eau, ces

liaisons doivent être brisées et une réponse non linéaire du système ainsi qu'un fractionnement isotopique et chimique sont constatés. Cela est principalement dû à la baisse de la teneur en eau dans l'argile qui renforce des liaisons chimiques et en crée de nouvelles. Aussi, la porosité réduite du système joue le rôle d'un filtre et donc ralentit ou accélère les ions en fonction de leurs rayons et charges.

L'OCDE (2000) propose plusieurs techniques pour extraire l'eau interstitielle selon les conditions de l'argile et des moyens disponibles. La centrifugation, la lixiviation, le pressage, la distillation sous vide, la distillation azéotropique et l'équilibration directe sont proposés dans ce document. Le tableau ci-dessous résume quelques propriétés de ces techniques.

Tableau 1 : Propriétés des techniques d'extraction d'eau interstitielle des sédiments

Technique	Spécifications	Sucion maximale (MPa)	Artefacts
Centrifugation	Faible vitesse (2500 rpm)	0.098	Oxydation de la solution
	Haute vitesse (14000 rpm)	5.3	Oxydation et baisse de la concentration avec l'extraction
	Ultracentrifugation (20000rpm)	2.3	Danger de destruction de la matière organique
Pressage	5 MPa	5	Petit ou indétectable
	70 MPa	<70	Petit ou indétectable jusqu'à 60-100MPa. Quand la pression augmente, on remarque une augmentation ou une baisse des concentrations
	552 MPa	<552	
« Leaching »	Eau déionisé	-	Dissolution des minerais : échange de cations avec l'argile
	Complexes de haute sélectivité	-	Échange complet avec les cations adsorbés
Distillation	Sous vide	980	Extraction possiblement incomplète, valeurs ^{18}O biaisées
	Azéotropique	980	Extraction possiblement incomplète, baisse de ^2H
Équilibration directe	Avec CO_2	-	Équilibration incomplète possiblement, temps d'équilibre difficile à estimer
	Avec H_2O	-	

On constate que toutes les méthodes décrites dans le tableau ci-dessus ont des points faibles qui peuvent avoir d'importantes conséquences sur la qualité des résultats et peuvent biaiser ces derniers.

Bottcher et al. (1997) exposent une nouvelle technique d'extraction d'eau interstitielle, le pressage à haute pression atteignant 110 MPa qui permet d'obtenir un échantillon d'eau à partir de différents espaces lacunaires à différentes pressions. Aussi, on obtient des volumes d'eau provenant de pores rapprochés. Les profils des concentrations de Ca, Mg et Cd en fonction de la profondeur pour trois pressions d'extraction montrent clairement que plus cette dernière augmente (de 5 à 110 MPa) plus la concentration des cations augmente dans l'eau récupérée. Le même constat est établi pour Mn, K, Na, Al, Fe, et Zn. Ceci n'est par contre pas le cas pour Cu et Pb. L'augmentation de la concentration de ces cations avec la pression d'extraction est due à une hausse de la pression partielle du CO_2 (P_{CO_2}) pendant le pressage. Le produit (H^+) (HCO_3^-) augmente directement avec (P_{CO_2}) engendrant une hausse de la concentration des cations basiques. D'un autre côté, le dégazage des échantillons pendant la préparation peut aussi influencer le pH.

Sacchi et al. (2000) traitent des effets de quelques processus ainsi que leurs influences sur la chimie de l'eau interstitielle. En effet, la hausse de pression lors du pressage ou de la centrifugation cause une diminution de la concentration de la solution extraite, la modification de la solubilité de la phase solide et aussi un possible effet sur la composition isotopique de la solution. La diminution de la pression lors de l'échantillonnage ou du conditionnement engendre le dégazage de la solution. Cela peut causer la précipitation de carbonates et la réduction de la porosité. L'oxydation de la phase solide est engendrée par un mauvais échantillonnage ou conditionnement ou aussi par la centrifugation, le « leaching » et le pressage si les opérations ne sont pas conduites dans une atmosphère contrôlée. Cela se traduit par une variation du pH de la solution, une dissolution des carbonates, la modification de la stabilité des autres phases et un échange cationique avec l'argile et la matière organique. Le changement de température n'a pas de conséquences s'il est inférieur à 10°C . Si la variation est plus grande que cette valeur, la stabilité de la phase solide risque d'être modifiée. Ces effets sont réversibles si l'échantillon est entreposé à la température originale.

L'échange ionique peut apparaître dans toutes les techniques d'extraction existantes. Cela se traduit par un changement majeur de la composition de la solution et par la dissolution et la précipitation de phase solide. On peut évaluer ce phénomène par une modélisation géochimique et dans certains cas, on peut le corriger.

La dissolution et précipitation des sels causent des changements majeurs dans la composition de la solution et résultent en un échange cationique. La dissolution peut

être évaluée si la minéralogie de l'argile est connue et la dissolution est estimée par une modélisation géochimique et par une observation minéralogique de l'échantillon sec. Enfin, une extraction incomplète de l'eau interstitielle résulte en un échantillon d'eau non représentatif de la composition isotopique et chimique de la solution. Il est difficile d'estimer cela sans une compréhension totale et approfondie du système argile/eau. On peut toutefois avoir recours à la modélisation pour corriger les isotopes stables.

3 DESCRIPTION DU DISPOSITIF D'EXTRACTION

Le dispositif d'extraction consiste en une cellule triaxiale modifiée. La différence entre une cellule triaxiale et la cellule d'extraction est que dans la première, on exerce une contre-pression à la tête et la base de l'échantillon et une pression cellulaire alors que dans la cellule d'extraction, on n'exerce pas de contre-pression, seule la pression cellulaire est exercée sur l'échantillon.

Une fois l'échantillon installé, une membrane est mise autour de l'échantillon d'argile qu'on confine à une pression d'extraction qui est la pression cellulaire. A la base de l'échantillon, des fentes permettent d'évacuer l'eau interstitielle. Cette dernière est acheminée à une éprouvette via une tubulure où on a fixé une seringue à l'extrémité. Cette dernière permet d'acheminer l'eau interstitielle directement à une éprouvette où le vide a été préalablement fait et ainsi empêcher l'eau extraite de rentrer en contact avec l'atmosphère.



Figure 1 : Photo du dispositif d'extraction

4 MONTAGE DE L'ÉCHANTILLON D'ARGILE

Un échantillon cylindrique d'argile d'une hauteur H comprise entre 20 et 25 cm et d'un diamètre D de 6.9 cm est utilisé dans ce type d'extracteur d'eau interstitielle. Tout d'abord, le cylindre d'argile est coupé avec un fil d'acier en tranches d'un centimètre d'épaisseur. Ensuite, on superpose ces différentes tranches d'argiles en veillant à mettre un papier filtre de type «Whatman» entre les tranches et sur le sommet et la base de l'argile. Ces papiers permettront de drainer horizontalement l'eau interstitielle extraite de l'échantillon. Une fois le montage réalisé, on entoure l'argile d'un papier filtre dont les propriétés de filtration sont semblables au papier filtre préalablement utilisé et dont la hauteur est égale à la hauteur du bloc d'argile (entre 20 et 25 cm) et le périmètre est égal à 21.67 cm. Cette feuille « filtre » permettra de drainer l'eau verticalement, du haut de l'échantillon vers le bas. Une tubulure en PVC achemine l'eau interstitielle extraite vers une éprouvette sans que cette dernière ne rentre en contact avec l'air.



Figure 2 : Préparation et montage de l'échantillon d'argile

5 INFLUENCE DU PAPIER FILTRE SUR LA CONCENTRATION EN IONS MAJEURS

L'influence du papier filtre sur la concentration en ions chlorure et sodium dans l'eau extraite a été contrôlée afin de vérifier qu'aucun phénomène accessoire tel l'adsorption ne nuisait aux résultats. Des solutions de chlorure de sodium à des concentrations variant de 150 à 2800 mg/L ont ainsi été préparées et mises en contact avec différentes masses de papier filtre. Les résultats montrent que les concentrations après dix jours de contact ne varient pas de manière significative par rapport aux concentrations des solutions initiales et ce, quelque soit la masse de papier utilisée.

6 TEST À BLANC

Le test a été réalisé dans les mêmes conditions qu'un essai réel en remplaçant l'échantillon d'argile par des pièces en plastique UHMW identiques à celles utilisées à la tête et à la base de la cellule d'extraction. L'eau circulant a été analysée avant et après passage dans l'appareil. Les résultats montrent que les concentrations en ions chlorure et sodium de l'eau extraite ne sont pas influencées de manière significative par le procédé d'extraction.

7 PERMÉABILITÉ DE LA MEMBRANE

Pour vérifier la perméabilité de la membrane et être certain que cette dernière empêche l'eau présente dans la cellule de la traverser et rejoindre l'échantillon, on enveloppe la membrane et l'échantillon dans une deuxième membrane et on place un papier filtre entre ces deux membranes. Une fois l'extraction finie, on vérifie que le papier filtre est sec. Ce test a été réalisé lors de trois essais : dans chacun de ces derniers, le papier filtre était sec après l'extraction d'eau.

8 INFLUENCE DE LA PRESSION D'EXTRACTION

Afin de vérifier l'effet de la pression d'extraction sur la chimie de l'eau interstitielle, on analyse plusieurs volumes d'eau qu'on extrait d'un même échantillon d'argile à différentes pressions.

Des essais mécaniques conduits sur des échantillons d'argiles Champlain (Benabdallah, 2007) démontrent que la pression de préconsolidation se situe autour de 250 kPa. L'attention sera portée sur ce point afin de savoir si la consolidation de l'argile modifie la chimie de l'eau interstitielle.

Les analyses de l'eau interstitielle concernent Na^+ , Cl^- , Mg^{2+} , K^+ et Ca^{2+} . On applique par étapes des pressions d'extraction de 100, 150, 180, 250, 350 et 550 kPa de telle sorte à avoir des pressions d'extraction inférieures et supérieures à la pression de préconsolidation de l'argile. Quoique les extractions à basses pressions (100, 150, 180 kPa) ne permettent d'obtenir que des petits volumes d'eau (10 mL environ), ils sont suffisants pour effectuer des analyses d'ions majeurs.

La Figure 3 ci-dessous présente un exemple de résultats obtenus sur l'échantillon ST-17

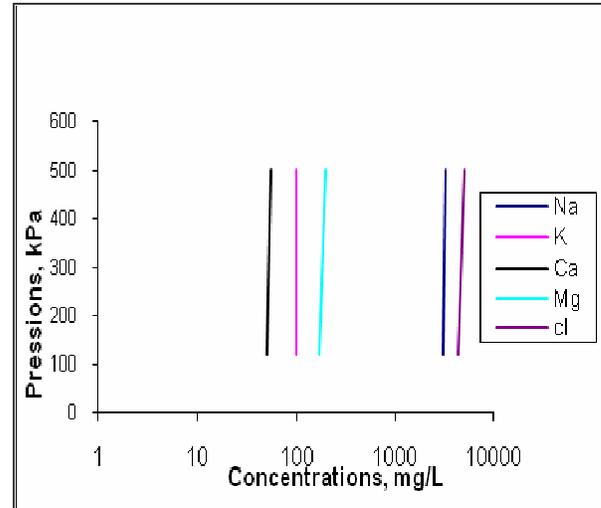


Figure 3: Effet de la pression d'extraction sur la concentration des espèces chimique (Échantillon ST-17)

Les analyses d'ions montrent que jusqu'à une pression d'extraction de 600 kPa (pression maximale de la cellule), la pression d'extraction n'a pas d'influence sur la chimie de l'eau. En effet, la concentration de tous les ions analysés varie de moins de 5% dans la totalité des paliers de pression utilisés. Toutefois, même si la pression d'extraction n'influence pas la chimie de l'eau, il est préférable d'utiliser deux ou trois paliers de pressions avant d'exercer la pression maximale (600 kPa) sur l'échantillon afin d'éviter de créer un grand gradient hydraulique et provoquer une érosion de l'échantillon.

9 ANALYSE DE L'EAU INTERSTITIELLE

Le dispositif décrit dans cet article a permis de tracer le profil de concentration d'anions, de cations, d'iode et d'isotopes ^{18}O et ^2H en fonction de la profondeur pour deux forages réalisés dans une argile Champlain. Cette argile provient d'un site situé sur la bordure de l'autoroute 640 à 2 km au nord de la ville de Lachenaie et à environ 40 km au nord-est de Montréal. Ce site est caractérisé par la présence d'une couche d'argile variant entre 17 et 24 m couverte d'une couche de sable et de sol organique.

9.1 Méthode de forage et d'extraction des échantillons

Les échantillons de sol utilisés proviennent de forages réalisés dans l'argile et sont récupérés dans des tubes Shelby qui une fois extraits avec un piston dans le laboratoire, permettent d'obtenir des cylindres d'argile d'un diamètre de 6.90 cm et d'une hauteur variant entre 20 cm et 25 cm.

Afin d'éviter le remaniement de l'argile pendant le forage, ces derniers sont réalisés par battage et lavage intérieur (jets d'eau vers le haut uniquement) d'un tubage lisse de calibre HW. Le forage est prolongé sur 6 m dans le roc par carottage HQ ou NQ.

9.2 Résultats des analyses chimiques

Des analyses chimiques ont été effectuées sur les échantillons d'eau interstitielle extraits de l'argile et aussi sur des échantillons d'eau provenant du roc.

Les résultats obtenus permettent de tracer les profils de concentrations en fonction de la profondeur. En ce qui concerne les ions Na^+ et Cl^- , on constate que pour les deux forages analysés, ces valeurs augmentent considérablement avec la profondeur (jusqu'à 70 fois). L'alcalinité augmente aussi mais avec des proportions moindres (environ 3 fois). Aussi, la tendance des concentrations à augmenter en fonction de la profondeur est constatée lors du passage de l'argile au roc. Ces résultats confirment que la salinité de l'eau sur ce site est extrêmement élevée ce qui la rend impropre à la consommation et à l'exploitation agricole.

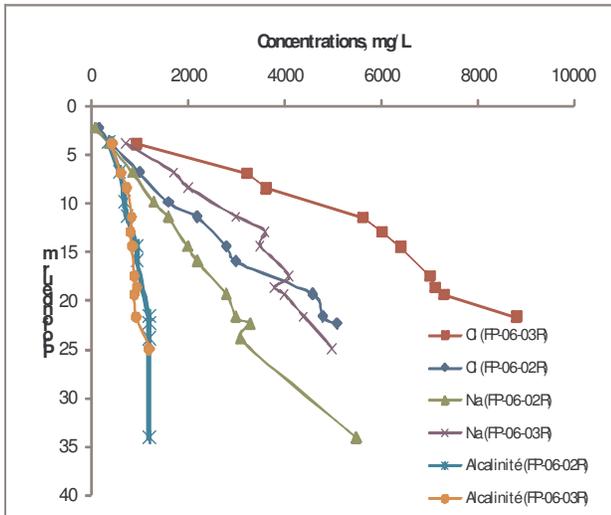


Figure 4 : Variation de l'alcalinité et de la concentration de Na^+ et de Cl^- en fonction de la profondeur

Pour les autres ions (K^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} et SO_4^{2-}), on remarque que les concentrations en fonction de la profondeur augmentent pour K^+ , Ca^{2+} et Mg^{2+} (Figure 5) dans l'argile. Par contre, lors du passage dans le roc, ces dernières diminuent à l'exception de Ca^{2+} qui continue à augmenter dans le roc. Aussi, la concentration de SO_4^{2-} diminue dans le forage FP-06-03R (Figure 6). Une explication de ce phénomène existe. Cette diminution est une des caractéristiques de la sulfatoréduction, un important processus anaérobie qui a eu lieu pendant la diagenèse des sédiments présents dans les fonds marins (Berner 1964) et les fonds de lacs (Lovely et Klug 1986). Les valeurs de SO_4^{2-} approchent le zéro dans l'eau interstitielle à cause de la sulfatoréduction (Lasaga et Holland, 1976). Dans des dépôts organiques riches en matière organique décomposable, les bactéries sulfatoréductrices oxydent la matière organique, consomment le SO_4^{2-} dissout, et produisent HS^- et CO_2 .

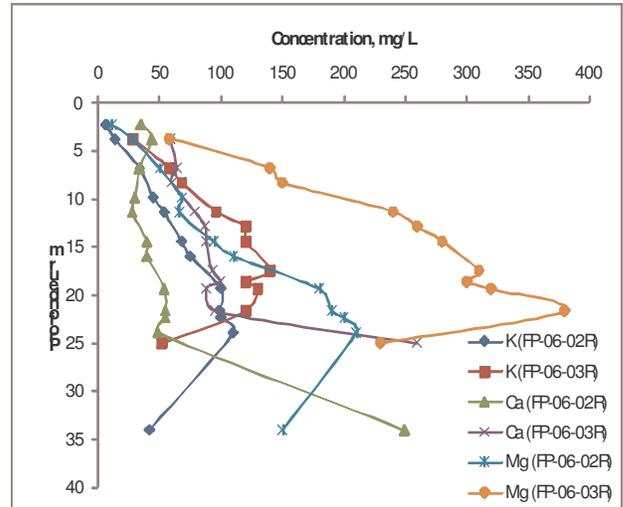


Figure 5 : Variation de la concentration de K^+ et de Ca^{2+} et Mg^{2+} en fonction de la profondeur

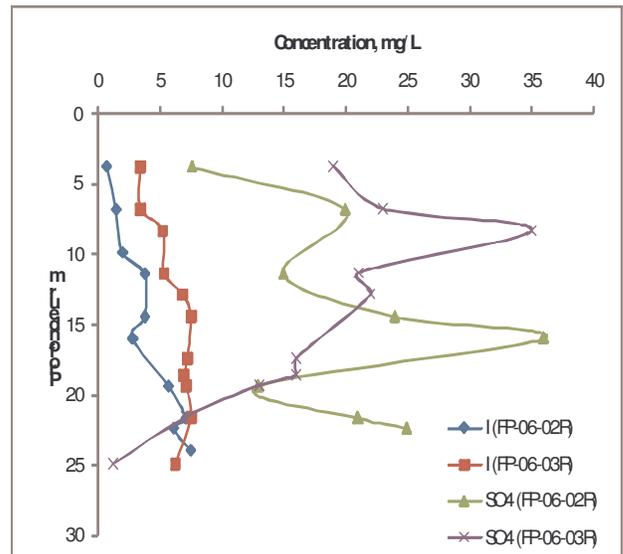


Figure 6 : Variation de la concentration de SO_4^{2-} et de I^- en fonction de la profondeur

Enfin, dans la figure 6, on constate que la concentration de l'iode augmente avec la profondeur. Sachant que l'iode est une des caractéristiques des eaux marines, on peut dire qu'une eau d'origine marine est présente dans l'eau interstitielle de l'argile. Aussi, on constate que plus on se dirige vers la surface, plus l'eau est diluée.

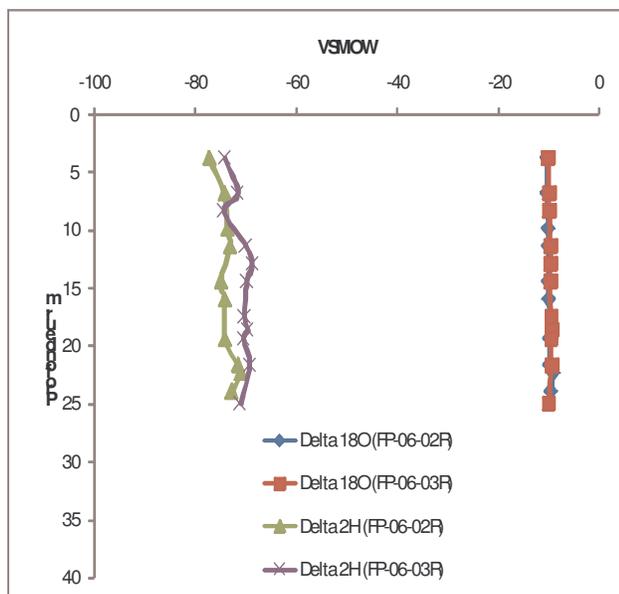


Figure 7 : Variation de $\delta^2\text{H}$ et $\delta^{18}\text{O}$ en fonction de la profondeur

Un autre type d'analyse a été réalisé sur l'eau interstitielle de l'argile et dans l'eau échantillonnée dans le roc. Il s'agit d'une analyse isotopique sur les isotopes ^2H et ^{18}O afin de déterminer l'âge relatif de l'eau analysée. D'après la figure 7, on remarque que la variation de $\delta^{18}\text{O}$ et de $\delta^2\text{H}$ en fonction de la profondeur est minime. Cette profondeur couvre toute l'épaisseur de la couche d'argile. Sachant que les valeurs de $\delta^{18}\text{O}$ dans l'eau de pluie dans la région de Montréal sont comprises entre -8 et -12 ‰ VSMOW, que les analyses utilisant le ^{18}O permettent de distinguer des zones d'eaux souterraines de différentes origines et que ce dernier n'est pas influencé par les processus géochimiques, on peut donc affirmer, au vu de ces résultats, que les eaux de précipitations et de fonte des neiges s'infiltrent à travers la couche d'argile jusqu'à une profondeur de 25 m et donc jusqu'au till et au roc. L'eau interstitielle dans l'argile à toutes les profondeurs investiguées a donc la même origine atmosphérique.

10 CONCLUSION

Le dispositif d'extraction d'eau interstitielle mis au point par les auteurs a permis d'obtenir des échantillons d'eau représentatifs de l'eau présente dans la couche d'argile à différentes profondeurs. Différents essais ont permis de montrer que la pression d'extraction, le papier filtre et les différentes composantes du système n'ont pas d'influence sur la chimie de l'eau.

Une fois analysés, les échantillons d'eau interstitielle ont permis de tracer les profils de distribution des concentrations des anions, cations et isotopes ^{18}O et ^2H dans la couche d'argile en fonction de la profondeur. Les résultats confirment que l'eau présente dans l'argile est salée et montrent une importante augmentation de la concentration des chlorures, du sodium, de l'alcalinité et du magnésium en fonction de la profondeur.

Enfin, on constate aussi à partir des analyses isotopiques que l'eau présente aux différentes profondeurs investiguées a la même origine atmosphérique.

REMERCIEMENTS

Les auteurs tiennent à remercier Antonio Gatien pour son aide dans les essais de laboratoire et lors des déplacements sur les sites d'étude et la compagnie BFI pour nous avoir permis l'accès à ses propriétés.

BIBLIOGRAPHIE

Benabdallah, E. M. and Chapuis R. P. (2007). Studying the influence of scale effects when computing the hydraulic conductivity of a Champlain clay. 60th Canadian Geotechnical Conference and 8th Joint CGS and IAHCNC Conference. Ottawa, Canada.

Bottcher G., Brumsack H-J., Heinrichs H. and Pohlmann M. (1997). A new highpressure squeezing technique for pore fluid extraction from terrestrial soils. *Water, Air, and Soil Pollution*, Volume 94, Numbers 3-4, March 1997, pp. 289-296(8)

Lovely, D. R. & M. J. Klug. (1986). Model for the distribution of sulfate reduction and methanogenesis in freshwater sediments. *Geochim. Cosmochim. Acta*, v. 50: 11–18.

Lasaga, A. C., and H. D. Holland. (1976). Mathematical aspects of non-steady-state diagenesis: *Geochim. Cosmochim. Acta*, v. 40, p. 257–266

OCDE. (2000). Porewater extraction from argillaceous rocks for geochemical characterization. OCDE

Ortega, G.A., J.A. Cherry and R. Aravena. (1997). Origin of pore water and salinity in the lacustrine Aquitard overlying the regional aquifer of Mexico City. *Journal of Hydrology*. **197**, pp. 47–69

Patterson R.J., Frapre S.J., Dykes L.S and Macleod R.A. (1978). A coring and squeezing technique for the detailed study of subsurface water chemistry. *Canadian Journal of Earth Sciences*, 15: 162-169

Sacchi E., Michelot J-L, Pitsch H., Lalieux P., Aranyossy J-F. (2000). Extraction of water and solutes from argillaceous rocks for geochemical characterisation: Methods, processes, and current understanding. *Hydrogeology Journal*, 9: 17–33.