

# DESCRIPTION RHEOLOGIQUE DU GONFLEMENT DES BENTONITES NATURELLES ET CALCIQUE ACTIVEES

## RHEOLOGICAL DESCRIPTION OF THE SWELLING OF NATURAL AND ACTIVATED BENTONITES

Gilles BARAST<sup>1-3</sup>, Andry RAZAKAMANANTSOA<sup>2</sup>, Iriani DJERAN MAIGRE<sup>1</sup>, David WILLIAMS<sup>3</sup>

<sup>1</sup> Université de Lyon, INSA de Lyon, LGCIE SMS ID, Fr-69621 Villeurbanne Cx

<sup>2</sup> IFSTTAR – GERS – GMG, CS4, Fr-44344 Bouguenais Cx

<sup>3</sup> The University of Queensland, Brisbane, QLD4072, Australie

**RÉSUMÉ** – Le ratio de gonflement  $\beta$  est utilisé pour comparer l'indice de gonflement libre et les paramètres rhéologiques de la bentonite. Le ratio de gonflement permet de mettre en évidence la différence de la minéralogie entre les bentonites. Une bonne corrélation est observée entre le ratio de gonflement libre et le ratio de gonflement rhéologique à l'état statique plutôt qu'à l'état dynamique.

**ABSTRACT** – The  $\beta$  swelling ratio is used to compare the free swelling index and rheological parameters of bentonite. The swelling ratio highlights the difference of mineralogy between bentonites. A good correlation was observed between the free swelling ratio and the static rheological swelling ratio rather than swelling ratio in dynamic state.

### 1. Introduction

La bentonite constitue la composante principale des barrières de faible perméabilité. La perméabilité est alors le paramètre clé de conception et de dimensionnement. La durée de sa mesure est très longue (Katsumi et al. 2008, Razakamanantsoa et al. 2012), car la conductivité hydraulique des géomatériaux bentonitiques est très faible, avec des valeurs dans la gamme de  $10^{-9}$  m/s à  $10^{-11}$  m/s (Couradin et al. 2008, Shackelford et al. 2000). Les mécanismes de gonflement sont intimement liés à la conductivité hydraulique des sols argileux. Cette propriété dépend de la nature de l'argile, le fluide et les états de charge. La caractérisation rhéologique d'argile est largement utilisée pour les matériaux de type colloïdes (Coussot 2005, van Olphen 1977). Quelques études tentent de relier les résultats de tests de rhéologie aux problèmes géotechniques rencontrés (Markgraf et al. 2006).

Des indicateurs de performances ont été développés pour palier au problème de très importantes durées des essais hydrauliques. On distingue en particulier l'essai de gonflement libre. Or, malgré la facilité de mesure de ce paramètre, son usage est limité uniquement à la qualification du potentiel de performance du matériau. De plus, les ingénieurs ont besoin de paramètres quantitatifs de dimensionnement pour la conception de ces ouvrages et ce paramètre peut en être un candidat très utile.

On se propose d'utiliser la rhéologie pour décrire les propriétés de gonflement de différents types de bentonite: sodique naturelle, calcique naturelle et activée. Les mesures rhéologiques sont effectuées dans des conditions statiques et dynamiques. Les résultats sont comparés avec ceux obtenus avec l'essai de gonflement libre à l'état liquide. Le gonflement, pour tous les essais, est modélisé à l'aide du ratio de gonflement, qui permet de décrire l'état d'imbibition des particules de bentonites. Ce modèle simple

est proposé pour permettre la comparaison des résultats issus des essais rhéologiques à l'état liquide, et ceux obtenus à partir des essais de gonflement à l'état de suspension.

## 2. Les matériaux utilisés

Toutes les argiles testées sont des bentonites commerciales couramment utilisées en tant que composante de barrière hydraulique en France (Couradin et al. 2008). B1, B2 et B3 sont des bentonites sodiques activées françaises, l'argile B4 est une sodique naturelle des Etats-Unis. Les B5 et B6 sont des bentonites calciques naturelles de France. Le fluide d'essai est l'eau déminéralisée (DW). Les propriétés des bentonites sont résumées dans le tableau 1. Les suspensions de bentonite ont été préparées en mélangeant de la bentonite séchée à l'air et à l'eau pendant 20 minutes. Pour l'équilibre hydrique du mélange, la suspension a été maintenue pendant 24 heures, dans une pièce à température contrôlée à  $22 \pm 1$  °C. Cette phase a été suivie par 1 min d'homogénéisation. La préparation des échantillons est identique pour tous les essais (Laribi et al. 2005). Pour toutes les suspensions de bentonite, la concentration en matière sèche dans l'eau déminéralisée (DW) reste dans la gamme de 4% à 8%. Pour chaque suspension de bentonite, un volume inférieur à 30 mL de suspension a été nécessaire pour tester le matériau dans le rhéomètre.

**Tableau 1:** Propriétés physiques et géotechnique des bentonites

Bentonite	Type	$w$ (%)	IP	VBS	$d_{moyenne}$	CE	pH
		%	%	mg/g	$\mu m$	$\mu S/cm$	
B1	Calcique activée	11,3	207	397	18,4	25,1	10
B2	Calcique activée	9,5	402	305	8	24,6	11
B3	Calcique activée	13,2	592	250	10	25	10
B4	Sodique naturelle	10,6	-	-	7,6	24,6	10
B5	Calcique naturelle	9,95	432	320	32,5	24,4	9,1
B6	Calcique naturelle	10,35	361	250	22,4	24,7	9,3

$w$ : teneur en eau,  $IP$ : Indice de Plasticité,  $VBS$ : Valeur au Bleu Methylene,  $d_{moyenne}$ : diamètre moyen des particules obtenu par granulométrie laser (Malver Mastersizer 2000),  $CE$ : Conductivité électrique,  $pH$  avec de l'eau.

## 3. Calcul du ratio de gonflement pour les trois essais

Le mécanisme de gonflement est modélisé avec un paramètre simple qui fait intervenir le rapport des proportions géométriques des particules de bentonites. Le modèle prend en compte une hypothèse sur la forme des particules d'argile (Russel et al. 1989, Tadros 1996). Ces particules sont des plaquettes, qui se regroupent et forment des agrégats. La morphologie résultante est de forme sphéroïde. La fraction de conditionnement  $\Phi_p$  représente la fraction d'argile particulaire dont les particules solides sont comprises dans le volume total  $V_T$  (Eq. 1):

$$\Phi_p = \Sigma V_b / V_T \quad (1)$$

La fraction de conditionnement  $\Phi_p$  dépend de la forme et de la taille des particules. Les particules d'argile ont des formes de plaquettes non sphériques. Un facteur de forme  $\rho = R/r$  est alors introduit pour tenir compte de la forme de la particule dans la

modélisation. Le modèle le plus simple est celui avec  $p=1$  où les particules sont considérées comme des sphères. Pour une description plus réaliste de l'échelle microscopique des particules le facteur de forme prend des valeurs égales à  $p=3$  et  $p=50$  (Güven et Pollastro 1992, Philipse 1996). Le coefficient  $\beta$  est introduit pour décrire le rapport de gonflement (Russel et al. 1989, Tadros 1996).  $\beta$  définit le gonflement des particules exprimée dans l'équation 2:

$$\beta = \frac{\sum V_p}{\sum V_b} = \frac{V_p}{V_b} = \frac{\frac{4}{3}\pi(R+a)(r+a)^2}{V_b} = \frac{V_b \left(1 + \frac{a}{R}\right) \left(1 + \frac{a}{r}\right)^2}{V_b} = \left(1 + \frac{a}{R}\right) \left(1 + \frac{a}{r}\right)^2 \quad (2)$$

$V_p$  est le volume unitaire fictif,  $R$  le grand axe et  $r$  le petit axe de la particule, associé à une couche d'eau immobile et homogène fictive, d'une épaisseur  $\alpha$ ,  $V_b$  le volume de la bentonite solide d'une particule, d'une épaisseur égale à une couche d'eau fictive,  $V_T$  le volume total et  $V_p$  le volume d'une particule.

Dans les paragraphes suivants, une approche simple est décrite pour déterminer le ratio de gonflement correspondant à chaque test, conforme à la représentation schématique texturale des argiles (Figure 1). L'hypothèse de forme sphéroïdale sera utilisée par la suite pour décrire les dimensions de la particule (Tableau 2).

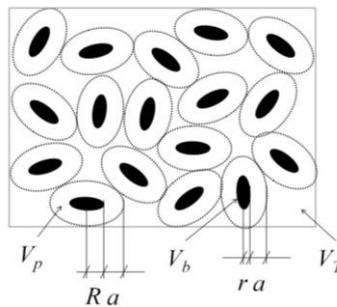


Figure 1. Schéma du modèle proposé de configuration des particules suite au gonflement.

**Tableau 2:** Fraction de conditionnement et viscosité intrinsèque choisis pour les bentonites en fonction des facteurs de formes des particules

Configuration	Facteur de forme $p$	Fraction de conditionnement $\Phi_p$	Viscosité intrinsèque $[\eta]$	$[\eta]\Phi_p$
Sphère	1	0,64 <sup>(1)</sup>	2,5 <sup>(2)</sup>	1,6
Sphéroïde	3	0,64 <sup>(3)</sup>	3,43 <sup>(4)</sup>	1,92
Ellipsoïde	50	0,115 <sup>(3)</sup>	35,1 <sup>(4)</sup>	4,03

<sup>(1)</sup> fraction de conditionnement maximale pour une sphère non déformable

<sup>(2)</sup> selon l'équation d'Einstein équation pour une sphère non déformable

<sup>(3)</sup> selon Philipse et al. 1996

<sup>(4)</sup> selon Guven and Pallastro 1992

Les différents tests mécaniques et rhéologiques seront unifiés avec le paramètre clé  $\beta$  qui est défini pour chaque essai, afin de décrire le gonflement qui se produit.

#### Essai de gonflement libre

Les essais standards de gonflement libre sont réalisés selon la norme française NF XP 84-703. Deux grammes de poudre d'argile séchée, broyée et passée à travers un tamis de 160  $\mu\text{m}$  de normalisation européenne, ont été progressivement versés dans un cylindre gradué de 0,1 mL, contenant 100 mL de solution aqueuse. Après 24 heures, la

hauteur de l'argile gonflée dans le cylindre est mesurée. Les essais ont un écart type de  $\pm 0,5$  mL/2g. Le résultat de l'essai donne la valeur de l'indice de gonflement libre (FSI). FSI représente le volume total  $V_T$  du matériau après gonflement à l'intérieur du cylindre d'essai,  $V_s$  est le volume total de la bentonite solide placé dans le tube cylindrique correspondant à  $V_s = m_s / \rho$ . La masse solide de la bentonite est  $m_s$  et la densité spécifique associée est  $\rho = 2,65$  g/cm<sup>3</sup>. Le test de gonflement libre est réalisé avec  $m_s = 2$ g d'argile. Le paramètre de ratio de gonflement  $\beta$  peut être décrit par l'équation 3:

$$\beta_{FSI} = FSI \rho_s \Phi_p / m_s \quad (3).$$

#### Mesures rhéologiques en dynamique (RDT)

Les tests rhéologiques dynamiques ont été réalisés avec un rhéomètre ARES à vitesse contrôlée. La géométrie utilisée est une cellule coaxiale de Couette de 32 mm de diamètre et de 34 mm de longueur.

Les tests sont réalisés avec 1%  $\gamma$  de déformation, sur une plage de fréquence  $\omega$  allant de 0,1 rad/s à 100 rad/s. Les essais de contrainte dynamique préliminaires à 1 Hz de 0,01% à 100% de déformation ont confirmé que, la valeur de déformation réalisée à 1% est suffisamment faible pour maintenir le matériau dans la région viscoélastique linéaire. Le module élastique  $G'$ , le module visqueux  $G''$  et le module d'élasticité en libre-fréquence  $G'_0$  (défini comme la valeur pour laquelle le module d'élasticité  $G'$  reste presque constant sur une plage de fréquence sur une échelle semi-logarithmique) sont déterminés conformément à la théorie de la viscoélasticité.

Les paramètres rhéologiques sont exprimés en fonction de la fraction d'argile. Le modèle proposé considère que la fraction maximale solide de la bentonite,  $\Sigma V_b$ , dans un volume total donné,  $V_T$ , est représentée par  $\Phi_m$ . La valeur de la fraction d'argile  $\Phi_m$  est défini comme la valeur de  $\Phi$  pour lequel le paramètre  $G'_0$  tend à l'infinie (Coussot, 2005). A partir de ces considérations, le ratio de gonflement  $\beta_{RDT}$  pour le test de rhéologie dynamique, peut être défini par l'équation 4:

$$\beta_{RDT} = \frac{\sum V_p}{\sum V_b} = \frac{\Phi_p V_T}{\Phi_m V_T} = \frac{\Phi_p}{\lim_{G'_0 \rightarrow \infty} \Phi} \quad (4).$$

#### Mesures rhéologiques en statique (RST)

Les essais de taux de cisaillement en régime permanent ont été effectués avec un Thermo Haake RheoScope à contrainte contrôlée, avec une géométrie cône-plan de diamètre du cône 70 mm et de 1° d'angle de cône. Quelques millilitres de la suspension de bentonite ont été versés sur la plaque. La température ambiante est maintenue constante à  $20 \pm 1$  °C. La procédure de test a commencé avec pré-cisaillement au taux de 1 rad/min et suivi par 1 min de temps de repos. Le test de cisaillement régulier a été réalisé pour des multiples mesures allant de 0,5 rad/s à 500 rad/s; avec les valeurs de la viscosité et de contraintes obtenues pour chaque taux après 60 secondes de temps de cisaillement. Les particules de bentonite sont des particules chargées où des interactions électrostatiques ont lieu. Russel et al. 1989 ont exprimé la viscosité  $\eta$ , pour des sphères chargées, en fonction de la fraction argileuse  $\Phi$ . Pour des fractions de volume modéré, l'extension de l'équation Krieger-Dougherty est plus précise, comme l'équation 5 réécrite à l'aide de cette théorie :

$$\frac{\eta}{\eta_s} = \left( 1 - \frac{\Phi_m}{\Phi_p} \right)^{-[\eta] \Phi_p} \quad (5)$$

avec  $\eta_s$  la viscosité du solvant,  $[\eta]$  de la viscosité intrinsèque,  $\Phi_p$  la fraction de conditionnement et  $\Phi_m$  la fraction volumique maximale possible de l'argile, dans le volume. Le ratio de gonflement  $\beta_{RST}$  peut être exprimé par l'équation 6:

$$\beta_{RST} = \frac{\sum V_p}{\sum V_b} = \frac{\Phi_p V_T}{\Phi_m V_T} = \frac{\Phi_p}{\Phi_m} \quad (6)$$

Enfin, l'équation 5 est insérée dans équation 6 pour obtenir l'expression de  $\beta_{RST}$  de l'équation 7:

$$\beta_{RST} = \frac{\Phi_p}{\Phi} \left( 1 - \left( \frac{\eta}{\eta_s} \right)^{-\frac{1}{(\eta)\Phi_p}} \right) \quad (7)$$

Connaissant la viscosité de l'eau  $\eta_s=0,001$  Pa.s, le ratio de gonflement  $\beta_{RST}$  peut être calculé à partir d'un essai de rhéologie permanent, à condition que la concentration de la suspension de bentonite soit suffisamment faible pour maintenir son comportement newtonien, et que la courbe tirée de l'équation 7 montre un alignement linéaire de données.

#### 4. Résultats et discussion

##### Gonflement libre

Les résultats FSI et le ratio de gonflement associé à tous les échantillons de bentonite (équation 3) sont reportés sur la Figure 2. Les valeurs FSI sont de même ordre de grandeur que celles mesurées par d'autres chercheurs pour des bentonites (Jo et al. 2001, Katsumi et al. 2008, Shackelford et al. 2000). Le potentiel de gonflement des bentonites calciques B5 et B6 sont similaires, avec une faible valeur de FSI autour de 6 mL/2g, ce qui est pertinent pour une argile faiblement gonflante. La bentonite sodique naturelle a un ratio de gonflement plus élevé avec FSI plus de 31 mL/2g, car elle contient plus de cations de sodium que les argiles activées.

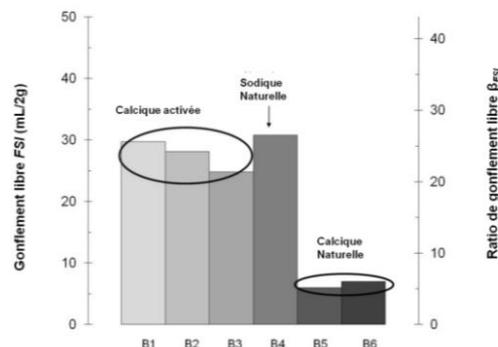


Figure 2. Indice de gonflement libre FSI, associé au ratio de gonflement  $\beta_{FSI}$  pour différentes bentonites. Le ratio pour une structure constituée des sphères ( $p = 1$ ).

##### Rhéologie en dynamique

Les fractions maximales pour un état d'agencement donné sont déterminées à partir de la Figure 3 où le module d'élasticité  $G'$  dépend de la fréquence libre.  $G'$  est exprimé en

fonction de la fraction volumique de la bentonite. Les paramètres  $n$  et  $\alpha$  sont obtenus par ajustement des résultats expérimentaux ( $G'o$  vs  $\Phi$ ) avec l'équation de la loi puissance (équation 7). Les bentonites cationiques naturelles ont le plus faible  $\beta_{RDT}$ . Comme le paramètre rhéologique  $G'$  peut représenter l'énergie d'interaction entre les particules (Tadros, 1996), les faibles valeurs sont attendues pour une argile calcique comme B5 et B6. Les particules avec un faible gonflement sont des particules entourées par des champs des forces électrostatiques faibles. Les valeurs pour l'argile activée B1, comme celles des bentonites B2 et B3 se trouvent dans la même gamme étroite. Il est impossible d'établir une distinction fine entre elles. La bentonite sodique naturelle B4, possède la plus grande valeur du ratio de gonflement.

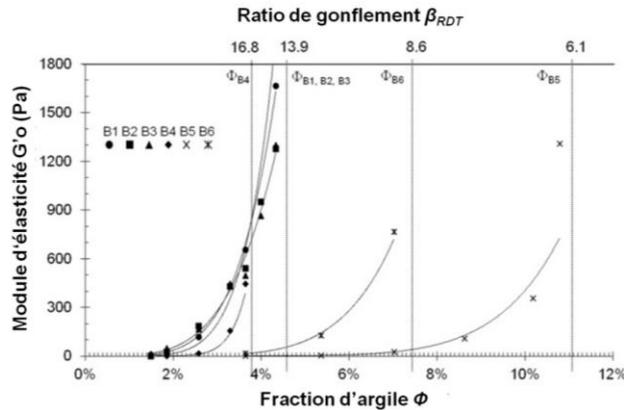


Figure 3. Module élastique de basse fréquence  $G'o$  en fonction du ratio de gonflement  $\beta_{RDT}$  et la fraction de bentonite pour une suspension de bentonite dans l'eau déminéralisée. La détermination est faite pour les sphères ( $p = 1$ ).

### Rhéologie en statique

La Figure 4 présente la viscosité relative en fonction de la fraction d'argile avec une dépendance linéaire prévue pour les fluides newtoniens. La Figure 5 montre que les bentonites calciques naturelles ont le ratio de gonflement le plus faible. Les bentonites calciques activées (B1 et B2) possèdent le ratio de gonflement le plus élevé (28,4 et 28,7), tandis que la valeur de la bentonite sodique naturelle (B4) se trouve dans la même gamme (28,5).

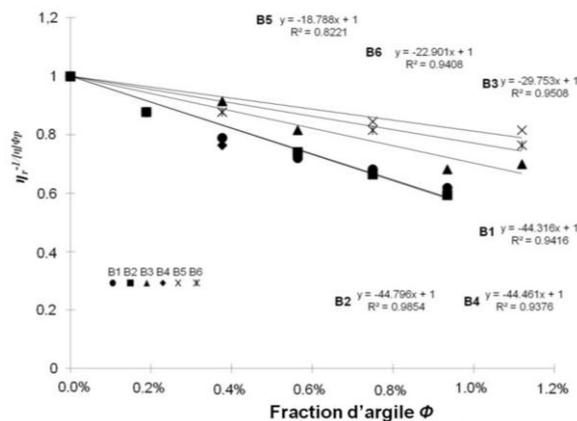


Figure 4. La viscosité relative  $\eta_r/\eta_{sp}$  en fonction de la fraction d'argile, pour ( $p = 1$ ). D'autres auteurs l'ont confirmé pour des comportements newtoniens (Paumier et al. 2008, Radojevic et Mitrovica 2007). On a également constaté que ces indications sont valables pour les bentonites calciques activées. Le cation  $Na^+$  dans la couche interne permet de

réduire le volume libre, et augmente ainsi le volume efficace occupé par l'argile. Bien qu'il n'y a pas une différence des performances entre les bentonites B1 et B2, la bentonite B3 a le ratio de gonflement le plus faible parmi les bentonites activées.

### Comparaison des différents ratios de gonflement

L'ordre de grandeur de la valeur du ratio de gonflement dépend du type d'essai. Tous les essais permettent de différencier les bentonites selon leur minéralogie. Les approches utilisées confirment que les argiles calciques naturelles, B5 et B6, ont la plus faible valeur de ratio de gonflement, tandis que la sodique naturelle, B4, a la valeur la plus forte.

La figure 5 met en évidence plusieurs points : Les valeurs de  $\beta$  pour les argiles activées se placent dans une position intermédiaire. Les droites déduites des valeurs de ratio de gonflement libre et de ratio de gonflement rhéologiques en statique et dynamique  $\beta_{FSI} - \beta_{RST}$  et  $\beta_{FSI} - \beta_{RDT}$  ont une forte corrélation ( $R^2$  proche de 0,9). Cette bonne corrélation peut être expliquée par le fait que les deux expériences sont conduites sur le même état d'argile qui est l'état de suspension. En outre, les valeurs de  $\beta_{FSI} - \beta_{RST}$  sont proches de la bissectrice, ce qui indique que les valeurs de ratio de gonflement sont très proches pour ces deux essais donnant ainsi plus de cohérence aux résultats mesurés.

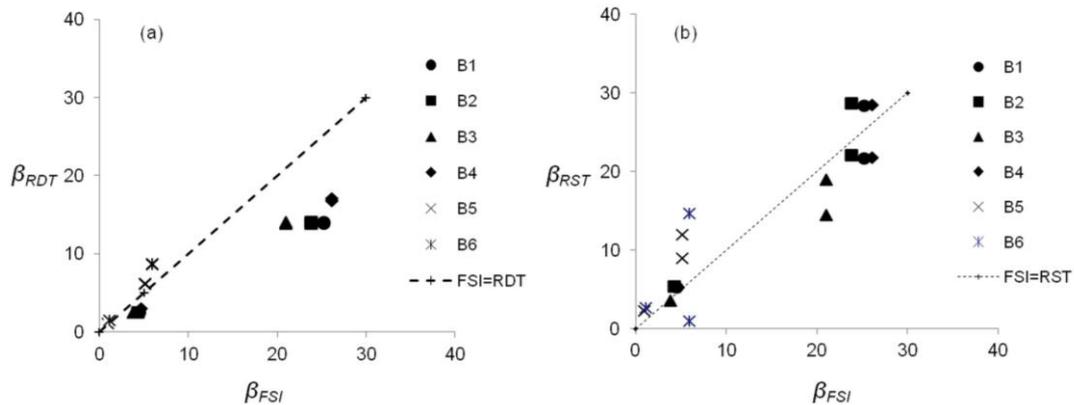


Figure 5. Comparaison du ratio de gonflement libre  $\beta_{FSI}$  et du ratio de gonflement rhéologiques en dynamique  $\beta_{RDT}$  (a) et en statique  $\beta_{RST}$  (b).

## 5. Conclusions

Le ratio de gonflement  $\beta$  est utilisé pour décrire les mécanismes de gonflement des bentonites. Les particules sont assimilées à des sphéroïdes avec un rapport d'aspect différent. Différentes nature des bentonites ont été étudiées expérimentalement: la sodique naturelle, la calcique naturelle et les bentonites calciques activées.

- Le ratio de gonflement  $\beta$  proposé, permet de relier les tests de gonflement libre et de rhéologie. Les deux essais rhéologiques  $\beta_{RST}$  et  $\beta_{RDT}$  sont en bon accord avec le  $\beta_{FSI}$ . L'essai de rhéologie en statique correspond mieux à l'indice de gonflement libre par rapport à des tests de rhéologie dynamiques. Il est possible d'estimer finement le potentiel de gonflement libre de bentonite avec des essais rhéologiques statiques.

- Cette étude a permis de démontrer que la rhéologie est en mesure de quantifier la capacité gonflante des bentonites, des natures différentes. Les corrélations extraites de l'approche proposée, entre le gonflement libre et la rhéologie, présentent une forte confiance ( $R^2 \sim 0,9$ ). L'essai rhéologique statique permet la classification des argiles par

rapport à leur minéralogie, plus précisément que l'essai rhéologique en dynamique. Il a été mis en évidence, que la rhéologie a la possibilité de quantifier finement les caractéristiques de gonflement des bentonites et qu'elle présente l'avantage de pouvoir mesurer le gonflement des bentonites modifiées, au-delà des capacités des mesures de l'essai de gonflement libre.

## 6. Références bibliographiques

- Couradin A., Razakamanantsoa A.R., Didier G., Djeran-Maigre I., (2008). Etude comparative de performance hydraulique d'adjuvant argileux en traitement de sol. *Proceedings JNGG'08*, June 18th-20th, Nantes, France, pp. 53-60.
- Coussot, P., (2005). Rheometry of pastes suspensions and granular materials. Applications in Industry and Environment. John Wiley and Sons, New York.
- Guven, N., Pollastro, R.M., (1992). Clay-water interface and its rheological implications. The Clay Minerals Society, Boulder.
- Katsumi T., Ishimori, H., Onikata M., Fukagawa R., (2008). Long-term barrier performance of modified bentonite materials against sodium and calcium permeant solutions. *Geotext. Geomembranes*, 26, pp. 14-30.
- Markgraf W., Horna R., Petha S., (2006). An approach to rheometry in soil mechanics- Structural changes in bentonite clayey and silty soils. *Soil Till. Res.*, 91, pp. 1-14.
- Paumier S., Pantet A., Monnet P., (2008). Evaluation of the organization of the homoionic smectite layers (Na<sup>+</sup> or Ca<sup>2+</sup>) in diluted dispersions using granulometry microscopy and rheometry. *Adv. Colloid Interfac.*, 141, pp. 66–75.
- Philipse A.P., (1996). The random contact equation and its implications for (colloidal) rods in packings, suspensions, and anisotropic powders. *Langmuir*. 12, pp. 1127-1133.
- Radojević Z., Mitrovića A., (2007). Study of montmorillonite and cationic activators system rheological characteristic change mechanism. *J. Eur. Ceram. Soc.*, 27, pp. 1691-1695.
- Razakamanantsoa R., Barast G., Djeran-Maigre I., (2012). Hydraulic performance of activated calcium bentonite treated by polyionic charged polymer. *Applied Clay Sciences*, 59-60, pp. 103-114.
- Russel, W.B., Saville, D.A., Schowalter, W.R., (1989). Colloidal dispersions. Cambridge University Press, Cambridge.
- Shackelford C.D., Benson C.H., Katsumi T., Edil, T.B., Lin L., (2000). Evaluating the hydraulic conductivity of GCLs permeated with non-standard liquids. *Geotext. Geomembranes*, 18, pp. 133-161.
- Tadros T.F., (1996). Correlations of viscoelastic properties of stable and flocculated suspensions with their interparticle interactions. *Adv. Colloid Interfac.*, 68, pp. 97-200.
- van Olphen H., (1977). An introduction to clay colloid chemistry, J. Wiley & Sons, N. York.