

Avancées dans le domaine de la thermodynamique des minéraux argileux

**Blanc P.¹, Vieillard P.², Gailhanou H.¹, Gaboreau S.¹, Tournassat C.¹, Madé B.³,
Giffaut E.³, Bergaya F.⁴**

1 - BRGM, 3 Av. C. Guillemin, BP6009, F-45060 Orléans Cedex 02

2 - CNRS-IC2MP, UMR 7285 Hydrasa, 5 Ave Albert Turpain, 86022 Poitiers Cedex

3 - ANDRA, F-92298 Châtenay-Malabry Cedex

4 - CRMD, 1b rue de la Férollerie, 45071 Orléans Cedex 2

La connaissance des propriétés thermodynamiques des minéraux argileux représente un enjeu important pour la mise en oeuvre et la sécurité à long terme des installations de stockage sous-terrain, pour le stockage de déchets nucléaire, de CO₂ ou de toute autre substance dangereuse. Ces propriétés, issues pour la plupart d'expériences de mise à l'équilibre plus ou moins bien contrôlées ou de méthodes d'estimation souffrant d'un déficit de données pour leur calibration, étaient considérées comme mal définies. Afin de répondre à ce manque de connaissance, un programme spécifique a été mis en place. Ce programme, baptisé Thermochimie, a été initié et conduit avec le soutien de l'ANDRA. Il vise à compléter les bases de données thermodynamiques nécessaires aux calculs géochimiques, vis-à-vis des propriétés de ces minéraux argileux.

Techniquement, une méthodologie d'acquisition spécifique a été mise en oeuvre, combinant des techniques de calorimétrie basse température adiabatique (avec un calorimètre PPMS pour Physical Properties Measurement System), de calorimétrie de dissolution et de calorimétrie différentielle à balayage (ou DSC pour Differential Scanning Calorimetry). Les résultats obtenus ont permis d'alimenter les bases de données pour les pôles argileux « naturels » et ont fait l'objet de plusieurs publications (1-2). Des modèles d'estimation (en cours) basés à la fois sur les mesures expérimentales et sur une synthèse bibliographique focalisée sur les phyllosilicates, ont déjà permis d'alimenter les bases de données pour des pôles argileux théoriques. Une extension récente sur l'étude des propriétés d'hydratation de certains minéraux argileux, et sur les conséquences de cette hydratation sur la stabilité de ces minéraux est aussi actuellement en cours. Les perspectives du programme visent des travaux sur l'hydratation et sur la stabilité de minéraux interstratifiés.

Les aspects plus fondamentaux de l'ensemble de ce programme sont publiés dans un ouvrage sous presse (3).

REFERENCES

- (1) Gailhanou et al. (2012) Thermodynamic properties of illite, smectite and beidellite by calorimetric methods: Enthalpies of formation, heat capacities, entropies and Gibbs free energies of formation *Geochimica Cosmochimica Acta* 89, 279-301
- (2) Vieillard et al. (2011) Hydration thermodynamics of the SWy-1 montmorillonite saturated with alkali and alkaline-earth cations: A predictive model. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 75, 19, 5664-5685
- (3) Blanc et al. (2013 sous presse). Thermodynamics of clay minerals. Chapter 6, Volume 5, Part A. in *Handbook of Clay Science*, Second edition. F. Bergaya & G. Lagaly (Eds.). *Developments of Clay Science*, Elsevier

