

Les minéraux argileux

Leur rôle et importance dans un site de stockage de déchets radioactifs en couche argileuse profonde

Norbert Clauer

Résumé

Les minéraux argileux constituent un matériau de choix dans la prospection de sites géologiques potentiels et la confection de barrières ouvragées, le tout dans un contexte de stockage souterrain de déchets radioactifs. Cette spécificité tient à leurs capacités à échanger des éléments chimiques et à leurs propriétés de gonflement. Ce constat doit cependant être nuancé parce que ces caractéristiques varient en fonction des types d'argiles. De plus, le potentiel à réduire ainsi la diffusibilité d'éléments chimiques, radioactifs en particulier, dans le milieu naturel dépend aussi de l'histoire qu'elles ont subie ou sont susceptibles de subir après l'entreposage, et par conséquent de paramètres physico-chimiques propres aux roches cibles (imbrication des agrégats argileux, présence d'oxy-hydroxydes et/ou de matière organique, etc.) ou indépendants des roches (température, compaction, etc.). D'autre part, les microdiscontinuités (microfractures) originelles ou induites par le fonçage ne semblent pas constituer des structures de dispersion de fluides, en tous les cas pas sur des distances importantes. Les quelques exemples évoqués soulignent aussi qu'il faut se garder de généralisations hâtives et continuer à privilégier l'acquisition de données analytiques.

Mots-clés

Matériaux argileux, physico-chimie, stockage géologique.

Abstract

On the role of clay minerals in the disposal of radioactive waste in a clay geological formation

Clay minerals represent appropriate candidates in the search of geological sites and man-made barriers for potential underground storage of nuclear waste, because of their cation-exchange capabilities and swelling properties. However, this statement needs also to take into consideration other aspects such as physical parameters specific (imbrication of the mineral aggregates, occurrence of oxy-hydroxides and/or organic matter), or not of the rocks (temperature, compaction, etc), and the evolutionary history of the target units as they might indirectly modify the above potentials. Alternatively, original micro-discontinuities (microfractures) or those induced by the construction of the site do not appear to represent potential drains for fluid escapes, at least over long distances. The few examples presented here emphasize also that one should be careful about generalizing any conclusion, and that analytical data acquisition should be privileged in order to control better the reliability of the results and the potentials of the applied method.

Keywords

Clay materials, physical chemistry, geological disposal.

Les minéraux argileux sont utilisés par l'Homme depuis des millénaires, sans qu'ils aient vraiment été étudiés et donc identifiés jusqu'à récemment. En effet, depuis la Haute Antiquité, leurs propriétés spécifiques, physiques et chimiques ont été reconnues tant dans la fabrication puis l'industrie des céramiques et des colorants, qu'en géologie et en science du sol, en biologie et en pharmacologie... Il existe à ce propos un intéressant traité de 1961, agréable à consulter, qui résume toutes les utilisations possibles de ces minéraux d'une manière très complète [1].

L'absence de travaux scientifiques systématiques sur les minéraux argileux jusqu'au milieu des années 30 est en fait essentiellement due à leur petite taille, du micromètre au nanomètre, que les outils scientifiques disponibles ne permettaient pas de distinguer. C'est la diffraction X qui est à l'origine de l'intérêt croissant pour ces minuscules particules considérées jusqu'au début des années 50 comme essentiellement amorphes.

Les « qualités » intrinsèques des minéraux argileux qui en font ce matériel remarquable à applications multiples sont en fait basées sur deux propriétés bien spécifiques : leur capacité à échanger des éléments chimiques avec leur environnement, et leur capacité à changer de volume par hydratation et déshydratation, progressivement ou en cycles répétés. Ces capacités varient évidemment selon les types d'argiles*, ce qui nécessite des études intégrées, minéralogiques (par diffraction X), morphologiques (par microscopie électronique) et géochimiques (par ICP, fluorescence X...) pour différencier les familles ou groupes de minéraux argileux et évaluer leurs caractéristiques relatives.

Ces propriétés font naturellement de ces minéraux des composants de roches tout à fait adéquats pour d'une part le stockage de déchets radioactifs dans des couches géologiques profondes, et d'autre part la confection de barrières ouvragées⁽¹⁾ de confinement des colis de déchets.

Au-delà des aspects pratiques induits par un éventuel stockage de déchets en couches géologiques et qui sont traités par ailleurs dans ce volume (voir par exemple la contribution de B. Bonin), la construction d'un site de stockage induit un certain nombre de changements qui sont résumés dans la *figure 1*. C'est le particularisme des argiles en tant que matériel de confinement par rapport à l'histoire géologique d'une couche cible et à la situation créée par l'entreposage, qui est examiné ici.

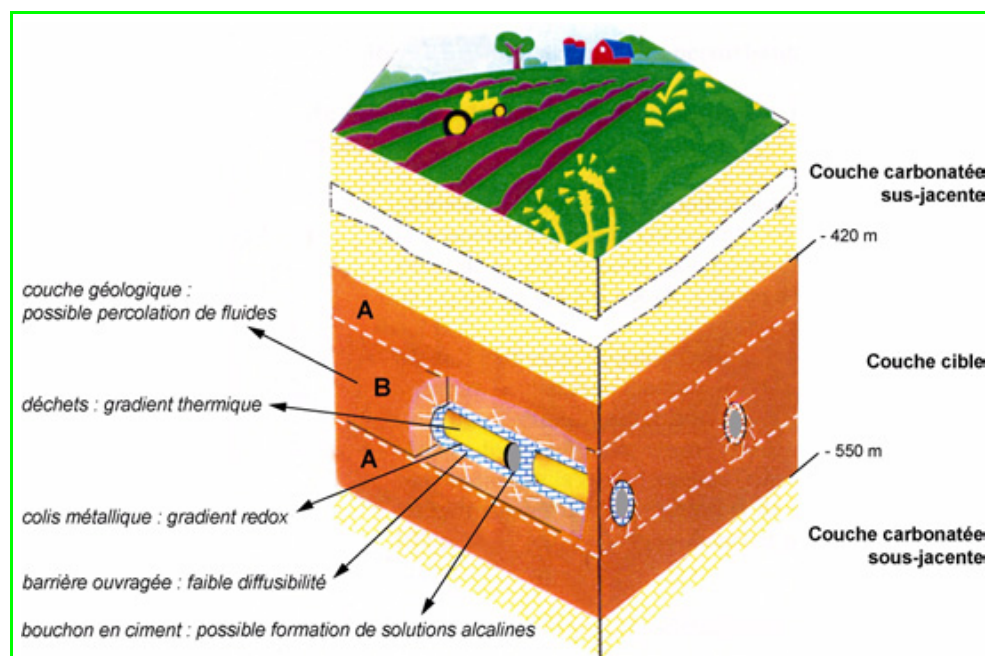


Figure 1 - Caractéristiques des différents composants majeurs d'un site de stockage dans une couche cible.

Les niveaux A sont considérés comme relativement indemnes de tout changement induit par la construction du laboratoire, alors que le niveau B est plus ou moins affecté (d'après [28]).

Quelques rappels

Avant d'évoquer les qualités physico-chimiques d'argiles de barrières ouvragées et de couches géologiques profondes susceptibles d'accueillir des déchets radioactifs, il est certainement utile de faire quelques rappels sur la définition et la classification de ces minéraux et sur leurs comportements en fonction de l'histoire des séquences sédimentaires sélectionnées ou de situations induites par le stockage.

Les minéraux argileux ont été définis de différentes manières selon la spécialité scientifique du rédacteur. La définition adoptée par les géologues s'appuie justement sur les spécificités chimiques et physiques évoquées. En effet, il s'agit d'aluminosilicates hydratés qui se présentent sous forme de feuillets (phyllosilicates), sont malléables quand ils sont humides et soyeux quand ils sont secs, ont une grande affinité pour l'eau, et ont des propriétés de gonflement importantes et de grandes capacités d'échange. Ces deux dernières caractéristiques sont directement liées aux charges interfoliaires. Enfin, ils sont petits ($< 2 \mu\text{m}$ en général), avec de grandes surfaces par rapport au volume.

Les minéraux argileux sont classés selon leur type de structure, l'organisation et la composition des feuillets, la charge interfoliaire et la composition des éléments interfoliaires [2]. Une classification simplifiée d'après Bailey [3] est

rappelée dans le *tableau I* et est commentée rapidement ci-après à l'aide de la *figure 2*. Un excellent traité en deux volumes résume bien l'ensemble des propriétés des minéraux argileux, détaille les méthodes d'étude souvent utilisées pour les identifier ou quantifier leurs caractéristiques, et propose une nomenclature complète et bien argumentée [4]. La lecture d'autres synthèses bibliographiques peut également être suggérée [5], en particulier un excellent fascicule récent très accessible [6]. Beaucoup d'autres résultats sont évidemment disponibles.

Au-delà de ces caractéristiques, il est tout aussi essentiel de connaître correctement les états des différents types d'eau associés aux particules argileuses. C'est d'eux que dépend la capacité de diffusion des éléments chimiques adsorbés aux particules argileuses ou intégrés dans les espaces interfoliaires disponibles. Cette connaissance nécessite des équipements tels que des spectromètres capables d'enregistrer les vibrations des molécules d'eau adsorbées [7].

Classification sommaire des minéraux argileux

Le groupe de la **kaolinite** est caractérisé par un empilement 1:1 (une couche tétraédrique, *figure 2*). La capacité d'échange cationique (CEC) varie de 3 à 15 meq⁽²⁾/100 g. Des molécules d'eau peuvent se glisser dans l'interfeuille, et l'on parle alors d'halloysite qui se développe surtout dans les sols et dont la CEC passe à 5-50 meq/100 g. Il s'agit d'une forme désordonnée

Tableau I - Classification des phyllosilicates hydratés (d'après [3]).
x : charge par unité.

Type de feuillet	Cations interfoliaires	Groupes	Sous-groupes
1:1	aucun ou H ₂ O	kaolinite (et serpentine) (x ± 0)	kaolins, serpentines
2:1	aucun	talc (et pyrophyllite) (x ± 0)	talcs, pyrophyllites
	hydratés et échangeables	smectite (x ± 0,2-0,6)	saponites, montmorillonites
	hydratés et échangeables	vermiculite (x ± 0,6-0,9)	verm. triocta. verm. diocta.
	non hydratés	micas (et illite) (x ± 0,5-1,0)	micas triocta. micas diocta.
	sous forme d'hydroxydes	chlorite (x variable)	chlor. triocta. chlor. diocta.

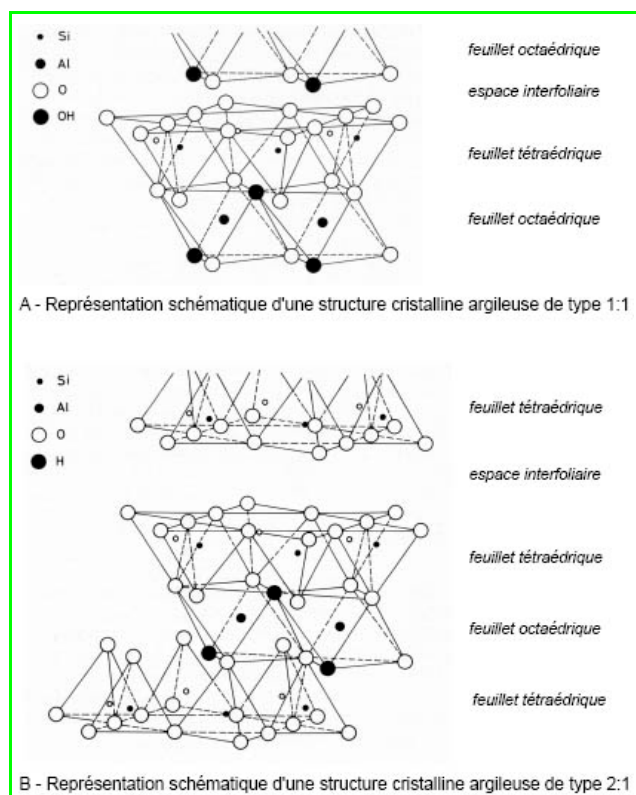


Figure 2 - Représentation schématique des structures cristallines argileuses de types 1:1 en A et 2:1 en B.

métastable et chimiquement plus variée que la kaolinite. Quand la température ambiante dans une roche augmente, c'est la dickite qui peut se former avec une CEC plus faible.

Le **talc** et la **pyrophyllite** se placent près des kaolins et présentent un empilement 2:1 comme tous les groupes suivants (deux couches tétraédriques pour une couche octaédrique, *figure 2*), avec également une absence de charge interfoliaire et une CEC faible. Ils se caractérisent aussi par l'absence de cations interfoliaires (et d'eau moléculaire), ce qui accentue leur toucher soyeux. On les trouve plutôt dans des contextes naturels métamorphiques.

Le groupe de l'**illite** est de loin celui qui a été le plus étudié à cause de sa présence ubiquiste dans tous les environnements supergènes⁽³⁾ (en surface et en faible profondeur) : dans les sols, les sédiments actuels à récents⁽⁴⁾ de tous types, les roches sédimentaires, les épontes hydrothermales de roches plutoniques ou volcaniques... Il s'agit d'un minéral surtout alumineux caractérisé par un empilement 2:1, à forte charge interfoliaire de l'ordre de 0,7 à 1,0 par unité, et à CEC de l'ordre de 10 à 40 meq/100 g. Son homéotype ferrique est la glauconite, à couleur verte et forme ovoïde très particulières, qui est également très chargée avec une CEC inférieure à 15 meq/100 g.

Le groupe des **smectites** est aussi très bien représenté, surtout dans les sols et les sédiments récents, mais aussi dans certaines roches. De structure 2:1, elles ont des charges interfoliaires faibles de 0,2 à 0,6 par unité, souvent neutralisées *pro parte* par l'accommodation de molécules d'eau en une ou plusieurs couches dans l'espace interfoliaire. La CEC varie entre 80 et 150 meq/100 g, ce qui est 10 fois supérieur à celle des autres minéraux argileux [8]. Les 4/5 de la CEC sont dus aux cations interfoliaires et le

reste provient des charges aux extrémités des particules. Les smectites ont aussi une grande aptitude à s'hydrater et se déshydrater de manière répétitive dans les domaines de l'altération continentale du fait de leur faible charge interfoliaire. Il en existe des di- et des trioctaédriques (avec respectivement deux/les trois sites octaédriques occupés par des cations trivalents/divalents). Les cations échangeables dominants sont Ca^{2+} , Mg^{2+} , Na^+ et H^+ .

Le groupe de la **vermiculite** forme un ensemble de minéraux gonflants comme les smectites, mais avec une charge interfoliaire plus élevée à environ 0,8 par unité de cellule. Elles présentent aussi un empilement 2:1 et peuvent être di- ou trioctaédriques. La CEC se situe vers 100-150 meq/100 g et peut dépasser 200 meq/100 g dans certains cas.

Le groupe de la **chlorite** est un peu plus complexe avec une structure 2:1 dans laquelle s'insinue une couche de brucite et/ou d'oxyde de Fe. La présence de brucite en position interfoliaire annule les capacités de gonflement et la CEC tombe entre 10 et 40 meq/100 g.

Le groupe des **minéraux interstratifiés** résulte de l'assemblage de deux, ou plus, types argileux. L'interstratification la plus commune se compose de feuillets d'illite et de smectite avec des capacités de gonflement et une CEC qui dépendent évidemment de la quantité relative de feuillets smectitiques dans le mélange. De nombreux travaux ont été réalisés sur ces phases minérales, voir notamment [9-13].

Le dernier groupe est celui de la **sepiolite-palygorskite** dont la particularité est une organisation en chenaux pouvant être remplis de molécules d'eau, ce qui donne une CEC très variable entre 20 et 300 meq/100 g. Ces minéraux, pour intéressants qu'ils soient, sont peu répandus dans la nature, ce qui n'en fait pas des candidats pour le propos de cette contribution.

En résumé

Les composants argileux les plus intéressants pour la réalisation de barrières ouvragées ou en tant que composants de couches géologiques pour des stockages souterrains de déchets radioactifs sont les smectites et les interstratifiés illite-smectite, si possible avec un fort pourcentage de feuillets smectitiques. Ces phases ont les plus grandes réactions à l'hydratation-déshydratation, avec donc les possibilités de gonflement les plus notoires, et aussi les plus grandes capacités à échanger des éléments chimiques avec leur milieu interstitiel. Il faut cependant nuancer ces conclusions, car si les smectites sont effectivement des « réducteurs » de diffusibilité d'éléments par leurs capacités de piégeage et de gonflement qui réduisent la porosité et la dispersion d'éléments et/ou d'isotopes toxiques à létaux, des évolutions naturelles et/ou des situations induites par la réalisation d'un site peuvent affecter ces qualités et les diminuer. L'enfouissement naturel qui provoque une compaction accentuée et une élévation de température, ainsi que le fonçage* des couches qui potentiellement produit des microdiscontinuités, peuvent constituer des causes d'une réduction notoire de ces qualités.

Argiles et stockage : avantages et inconvénients

Certains minéraux argileux présentent donc des potentiels intéressants dans un contexte de stockage

souterrain de déchets radioactifs. Les barrières ouvragées des sites sont surtout destinées à interdire toute fuite de déchets par des fluides susceptibles de s'échapper à cause du vieillissement des colis métalliques et/ou de l'ouvrage cimenté. Elles doivent aussi résister à des augmentations de température dues aux déchets eux-mêmes. De la même manière, la cible géologique sera soumise à une élévation, certes moindre, de la température, et pourra également être soumise à des migrations de fluides, naturels ou artificiels. Elle pourra aussi subir des variations d'humidité et de température au niveau des galeries et des colis qui potentiellement peuvent altérer leurs propriétés physico-chimiques, sur des volumes certes faibles. Ces changements peuvent *in fine* induire des modifications des qualités spécifiques des argiles évoquées précédemment, en modifiant par exemple les types de minéraux. Les différentes conditions dont il faut théoriquement prendre la mesure dans un site de stockage, et les caractéristiques de chaque composant, sont résumées sur la *figure 1*.

Les minéraux argileux des barrières ouvragées

Si le principe de l'emballage des récipients métalliques remplis de déchets par des barrières ouvragées est retenu, le choix se portera très probablement sur la bentonite comme matériel constitutif de ces barrières. Dans la nature, les bentonites dérivent de cendres volcaniques déposées en fins niveaux dans des sédiments variés lors d'éruptions volcaniques. Formées surtout de verre volcanique, ces cendres se transforment après leur dépôt en smectites très pures qui peuvent ensuite, dans un cadre naturel, évoluer progressivement en illite pendant l'enfouissement des sédiments sous l'effet de l'accroissement de la température et de l'apport de K^+ qui se fixe dans les sites interfoliaires des smectites. Le choix de telles roches et minéraux est donc justifié dans la mesure où la barrière aura d'appréciables capacités de gonflement. La faculté de gonfler limitera physiquement les migrations de fluides, et la capacité d'échange élevée piégera la plupart sinon tous les éléments dissous dans les fluides, en particulier Fe^{3+} et Ca^{2+} , mais aussi les radionucléides* [14] et autres éléments éventuellement libérés par l'altération des colis métalliques et les ciments. Les radionucléides et Ca^{2+} seront d'autant plus fixés que la CEC des minéraux constitutifs sera élevée, alors que Fe^{3+} et aussi Al^{3+} en excès précipiteront plutôt sous forme d'oxy-hydroxydes en fonction des conditions d'oxydoréduction. Il faut signaler que des travaux de pédologie ont montré que ces oxy-hydroxydes, qui ne sont pas des constituants primaires⁽⁵⁾ de roches enfouies, peuvent recouvrir les particules de smectite, ce qui a pour effet de réduire fortement, voire de supprimer, les capacités d'échanges ioniques. Il en est de même pour la matière organique au cours de sa maturation [15].

Un autre facteur peut avoir une influence critique et doit être examiné avec soin : la température atteinte par le stockage. Toute augmentation est susceptible de modifier les propriétés physico-chimiques de la smectite d'origine, pour peu qu'il y ait du K^+ disponible. De plus, l'augmentation de température modifiera d'autant plus les particules de smectite qu'elles seront petites [16]. Pour ce qui est de la transition naturelle de la smectite en illite dans des conditions d'enfouissement progressif naturel, de nombreux travaux ont montré que le mécanisme de « l'illitisation » débute vers 70 °C [17-18] et est achevé vers 115 °C [19]. En d'autres termes, la gamme des températures critiques se

situe entre 70 et 115 °C, sur des périodes de temps qui peuvent être très variables. Si l'on en croit Eberl et Hower [20] qui ont extrapolé des résultats d'études expérimentales à 300 °C sous 1,2 kbar vers des températures plus basses, la transformation d'une smectite en une forme interstratifiée riche en illite nécessite une centaine de millions d'années à 20 °C, un million d'années à 60 °C et une centaine de milliers d'années à 80 °C. Or dans les argilites* callovo-oxfordiennes de Meuse/Haute-Marne, la température actuelle est déjà de l'ordre de 50 °C et elle s'élèvera en cas de stockage de déchets pour entrer très probablement dans la zone critique entre 70 et 115 °C. Toute augmentation de température diminue les qualités de gonflement et d'échange cationique de toute smectite utilisée comme matériel protecteur de colis, car elle est transformée automatiquement en minéraux moins « performants » tels que l'illite et ses formes interstratifiées s'il y a du K^+ disponible. En fait, des résultats obtenus sur un niveau de bentonite de 2,5 m d'épaisseur échantillonné dans le Montana (E.-U.) mettent en évidence d'autres aspects de telles réactions qui sont plutôt positifs par rapport aux objectifs [21]. En effet, si l'illitisation diminue les capacités d'échanges des smectites originelles, elle a la particularité de « cimenter » l'ensemble du banc. En même temps que la recristallisation de smectite en illite va diminuer les propriétés de piège cationique, elle va diminuer la porosité, non pas par gonflement ou compaction, mais par une meilleure imbrication des particules argileuses, qui de fait limitera l'accès aux sites échangeables des particules mais aussi la migration des fluides. Des datations isotopiques réalisées au bord et au centre du niveau de bentonite du Montana ont ainsi permis d'estimer la vitesse de migration du processus de l'illitisation, donc du processus de cimentation dans le cas présent, à environ 0,06 μm par an pour une élévation de température de 80 à 135 °C, soit 6 m par million d'années. Cette lente vitesse de migration de K^+ suggère une dispersion lente d'autres éléments alcalins dans une bentonite « illitisée », c'est-à-dire colmatée. Elle fixe les idées sur la vitesse à laquelle sont susceptibles de migrer les cations dans une telle roche. Elle pourrait être même plus faible pour les radionucléides qui sont réputés être moins mobiles que K^+ . D'autres travaux dans ce sens sont certainement nécessaires, surtout s'il s'agit de démontrer qu'une éventuelle augmentation de la température d'une barrière ouvragée ne détériore pas nécessairement ses qualités intrinsèques en modifiant son composant minéral principal.

Les minéraux argileux des cibles géologiques

Deux séquences sédimentaires argileuses avaient été retenues initialement pour les travaux préliminaires sur la faisabilité d'un stockage souterrain : les argilites de l'est du Bassin de Paris et les siltites du Gard. Dans ces deux séries, la fraction argileuse représente respectivement 10-40 % et 10-30 % de la roche totale. Elle n'est donc pas majoritaire, mélangée surtout à du quartz et des carbonates. D'autre part, les phases argileuses présentes ne sont pas pures et comprennent surtout des types peu « favorables » tels qu'illite, kaolinite et chlorite. Dans la zone du laboratoire souterrain de Bure, la fraction argileuse se compose d'environ 10 % de kaolinite, 20 % de chlorite, 45 % d'illite et 25 % d'interstratifiés illite-smectite à environ 30 % de feuillets smectitiques [22], ce qui donne à la roche un pouvoir d'échange cationique approximatif de 1-3 meq/100 g. Dans le cas des siltites du Gard, la fraction argileuse se compose

de 55 à 80 % d'interstratifiés illite-smectite à 60 % de feuillets smectitiques, 15 % d'illite, 5 % de kaolinite et occasionnellement de chlorite et de corrensite en faibles teneurs [23]. Là aussi, la capacité d'échange cationique est réduite à 3-15 meq/100 g de roche. De ces résultats, il est clair que ce n'est pas la CEC des argiles qui constituera la caractéristique déterminante de la cible choisie.

Des travaux récents sur les effets de cycles successifs d'hydratation et de déshydratation sur des échantillons du Callovo-Oxfordien ont montré que des microfuitures ne se forment pas systématiquement dans les roches, étudiées au microscope électronique environnemental⁽⁶⁾, et que leur formation ne dépendait pas seulement de la teneur des roches en minéraux argileux gonflants [24]. Il semble que le gonflement et la déshydratation, par exemple dans le cadre du creusement de galeries, ne soient pas liés de manière simple et directe aux seules propriétés physico-chimiques des minéraux argileux constitutifs. En effet, en réalisant des expériences d'hydratation/déshydratation de la poudre d'une argilite callovo-oxfordienne par percolation d'eau distillée, Warr (communication personnelle) n'observe aucune formation de microfuitures et pourtant les conditions sont extrêmes. D'autres paramètres, dont la capacité de rétention d'eau des minéraux argileux en position interparticulaire et pas seulement intraparticulaire, vont devoir être envisagés pour expliquer les changements de volume des roches références et la formation de microfuitures secondaires. Cette notion de rétention d'eau interparticulaire par certains minéraux argileux a été étudiée en détail par les pédologues, peu par les sédimentologues. Pour illustrer le propos et souligner combien cet espace interparticulaire peut être important, la *figure 3* présente un mica dont les espaces interparticulaires accessibles ont été remplis par des produits carbonatés ; le volume rempli est important par rapport à celui des feuillets.

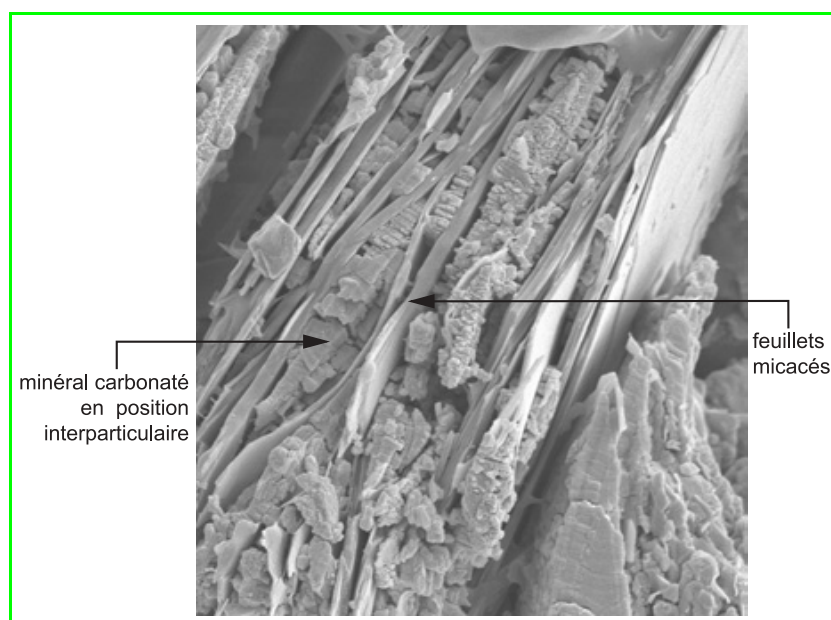


Figure 3 - Image au microscope électronique à balayage de particules micacées séparées par un remplissage carbonaté (d'après [6]).

Reste le problème des possibilités de transfert de matière induit par les discontinuités (microfuitures, failles, géodes, etc.) qui ont pu se développer dans les roches au cours de leur histoire ou par le fonçage de la séquence durant la

construction du site de stockage. Une étude minéralogique et géochimique détaillée du Callovo-Oxfordien a montré que les réactions induites par la diagenèse⁽⁷⁾ naturelle de la séquence n'ont eu que des répercussions mineures sur les transferts de matière le long de telles discontinuités [22, 25]. L'étude d'intrusions de basaltes dans des sédiments, qui peuvent constituer d'intéressants analogues naturels de stockages, a aussi montré qu'il n'y avait pas, en règle générale, un comportement simple de l'encaissant argileux soumis à une forte augmentation de température, soudaine et courte dans le temps [26-27]. Une hiérarchisation précise des paramètres susceptibles d'intervenir dans la séquence choisie doit être établie, ce qui ne peut se concevoir par l'utilisation de résultats obtenus dans des conditions mal contraintes ou différentes de celles qui ont « façonné » la cible choisie. L'évaluation précise de la « qualité » de la couche retenue dépendra de la qualité et de la rigueur de la démarche.

Conclusion

Le potentiel physico-chimique des argiles, tant par leurs capacités à échanger des éléments chimiques que par leurs propriétés de gonflement, constitue certainement un préalable indispensable pour le choix de l'implantation dans des couches hôtes sédimentaires d'un site de stockage. Il faut cependant nuancer ce concept en fonction de la composition minéralogique des roches cibles, et aussi de l'histoire qu'elles ont déjà subie ou qu'elles sont susceptibles de subir. D'autre part, l'existence de discontinuités liées à l'histoire des roches, ainsi que la création de discontinuités dans les roches au cours du fonçage, ne semblent pas constituer des structures majeures de fuites de fluides, en tous les cas pas sur des distances importantes. Enfin, les quelques exemples cités soulignent aussi qu'il faut se garder de généralisations hâtives, et donc continuer à privilégier l'acquisition analytique.

Remerciements

Je voudrais remercier Paul Rigny de m'avoir sollicité pour cet article, Annie Bouzeghaia (Centre de géochimie de la surface, CNRS/ULP) pour son aide dans la confection des figures, Michel Rautureau pour m'avoir autorisé (en accord avec les Éditions Septima) à reproduire l'image de la *figure 3*, et Barbara Brunet-Imbault qui l'a réalisée.

Notes et références

- (1) Il s'agit de constructions à base de matériaux argileux dont le rôle est d'augmenter l'isolation des colis dans les ouvrages souterrains par rapport aux couches géologiques encaissantes.
- (2) meq : milliéquivalent.
- (3) Les environnements supergènes englobent l'ensemble des formations géologiques entre la surface et quelques milliers de mètres de profondeur.
- (4) La distinction entre actuel et récent peut paraître subtile aux non-initiés : « actuels » se rapportent à tous les sédiments qui se déposent « sous nos yeux » et « récents » se rapportent à tous les sédiments déposés « récemment » avant que nous puissions les observer (de quelques centaines à quelques millions d'années).
- (5) Les constituants primaires caractérisent la formation des roches et les secondaires, leur altération ultérieure, en particulier par leur mise à l'affleurement.

- (6) Il s'agit d'un microscope électronique à balayage appelé environnemental car la chambre d'analyse n'est pas portée à un vide poussé, qui détruit souvent les textures primaires des objets observés, mais à une pression proche de celle de l'atmosphère, qui permet de modifier le degré d'humidité, la température et même la chimie des vapeurs introduites.
- (7) La diagenèse est un concept qui englobe tous les changements cristalochimiques et organochimiques que peut subir un sédiment après son dépôt. Cette notion est relativement vague, mais ses effets sont notoires en particulier sous l'effet d'une température croissante, même modeste, et aussi sous l'effet de fluides interstitiels piégés dans les sédiments pendant leur dépôt et qui sont expulsés des roches sous l'effet de la compaction. La diagenèse est donc un processus souvent lié à l'enfouissement de sédiments et qui se situe dans un domaine de température de 30 à 130 °C, à la limite supérieure de la « fenêtre à huile » des pétroliers. Au-delà commence le domaine métamorphique, souvent appelé « anchimétamorphisme » car peu ou pas visible dans les roches. Dans le cas de stockage de déchets radioactifs dans des couches géologiques, il faut être conscient que l'entreposage va « ajouter » une dimension anthropique à la diagenèse naturelle, ce qui complique la situation et surtout nécessite une référence de l'état cristallographique-géochimique de la cible avant tout stockage pour pouvoir identifier et quantifier tout changement lié au stockage.
- [1] Robertson R.H.S., *Mineral use guide*, Cleaver-Hume Press, London, **1961**.
- [2] *Crystal structures of clay minerals and their X-ray identification*, G.W. Brindley, G. Brown (eds), Mineralogical Society of London, Monography 5, **1984**.
- [3] Bailey S.W., Summary of recommendations of AIPEA Nomenclature Committee, *Clay Minerals*, **1980**, 15, p. 85.
- [4] Caillière S., Hénin S., Rautureau M., *Minéralogie des argiles* : I. Structure et propriétés physico-chimiques ; II. Classification et nomenclature, 2^e éd., Masson, Paris, **1982**.
- [5] Velde B., *Clay Minerals: A physico-chemical explanation of their occurrence*, Elsevier, Amsterdam, **1985**.
- [6] Rautureau M., Caillière S., Hénin S., *Les argiles*, 2nd éd., Éditions Septima, **2004**.
- [7] Rinnert E., *États d'hydratation d'argiles suivis par analyses vibrationnelles de l'eau et des hydroxyles dans le proche infrarouge. Application aux systèmes saponite et bentonite*, Thèse Université Henri Poincaré, Nancy, **2004**.
- [8] *Data handbook for clay minerals and other non-metallic minerals*, H. Van Olphen, J.J. Fripiat (eds), Pergamon Press, Oxford, **1979**.
- [9] Reynolds R.C., Interstratified clay minerals, *Crystal structures of clay minerals and their X-ray identification*, G.W. Brindley, G. Brown (eds), Mineralogical Society of London, **1980**, p. 249.
- [10] Srodon J., Precise identification of illite/smectite interstratifications by X-ray powder diffraction, *Clays and Clay Minerals*, **1980**, 28, p. 401.
- [11] Srodon J., X-ray identification of illitic materials, *Clays and Clay Minerals*, **1984**, 32, p. 337.
- [12] Nadeau P., Wilson M.J., McHardy W.J., Tait J.M., Interstratified clays as fundamental particles, *Science*, **1984**, 225, p. 923.
- [13] Bethke C.M., Altaner S.P., Layer-by layer mechanism of smectite illitization and application to a new rate law, *Clays and Clay Minerals*, **1986**, 34, p. 136.
- [14] Pusch R., Transport of radionuclides in smectite clay, *Environmental interactions of clays*, A. Parker, J.E. Rae (eds), Springer, Berlin, Heidelberg, **1998**, p. 7.
- [15] Michel P., Clauer N., Michels R., Trouiller A., *Experimental investigations of clay-organic matter interactions*, Joint Earth Sciences Meeting, Société Géologique de France-Geologische Vereinigung, Strasbourg, 20-25 sept. **2004**.
- [16] Clauer N., Liewig N., Pierret M.C., Toulkeridis T., Crystallization conditions of fundamental particles from mixed-layers illite-smectite of bentonites based on isotopic data (K-Ar, Rb-Sr and $\delta^{18}\text{O}$), *Clays and Clay Minerals*, **2003**, 51, p. 664.
- [17] Aronson J.L., Hower J., Mechanism of burial metamorphism of argillaceous sediment. 2. Radiogenic argon evidence, *Geological Soc. of Am. Bull.*, **1976**, 87, p. 738.
- [18] Sucha V., Kraus I., Gerthofferova H., Petes J., Serejkova M., Smectite to illite conversion in bentonites and shales of the East Slovak Basin, *Clay Minerals*, **1993**, 28, p. 243.
- [19] Freed R.L., Peacor D.R., Geopressured shale and sealing effect of smectite to illite transition, *Am. Ass. of Petroleum Geologists Bull.*, **1989**, 73, p. 1223.
- [20] Eberl D.D., Hower J., Kinetics of illite formation, *Geological Soc. of Am. Bull.*, **1976**, 87, p. 1326.
- [21] Clauer N., Srodon J., Francu J., Sucha V., K-Ar dating of illite fundamental particles separated from illite/smectite, *Clay Minerals*, **1997**, 32, p. 181.
- [22] Rousset D., Clauer N., Discrete clay diagenesis in a very low-permeable sequence constrained by an isotopic (K-Ar and Rb-Sr) study, *Mineralogy and Petrology*, **2003**, 145, p. 182.
- [23] Rousset D., *Étude de la fraction argileuse de séquences sédimentaires de la Meuse et du Gard. Reconstitution de l'histoire diagénétique et des caractéristiques physico-chimiques des cibles. Aspects minéralogiques, géochimiques et isotopiques*, Thèse Université Louis Pasteur, Strasbourg, **2002**.
- [24] Montes-Hernandez G., *Étude expérimentale de la sorption d'eau et du gonflement des argiles par microscopie électronique à balayage environnemental (ESEM) et l'analyse digitale d'images*, Thèse Université Louis Pasteur, Strasbourg, **2002**.
- [25] Buschaert S., Fourcade S., Cathelineau M., Deloule E., Martineau F., Ayt Ougoudal M., Trouiller A., Widespread cementation induced by inflow of continental water in the eastern part of the Paris basin: O and C isotopic study of carbonate cements, *Applied Geochemistry*, **2004**, 19(8), p. 1201.
- [26] Techer I., Lancelot J., Clauer N., Liotard J.M., Advocat T., Alteration of a basaltic glass in an argillaceous medium: The Salagou dike of the Lodève Permian Basin (France). Analogy with an underground nuclear waste repository, *Geochim. et Cosmochim. Acta*, **2001**, 65, p. 1071.
- [27] Techer I., Lancelot J., Rousset D., Boisson J.Y., Clauer N., Isotopic characterization of thermally induced mass transfers in claystones intruded by a basaltic dike: a natural analogue for testing high-level and long-live radioactive waste disposals, *Applied Geochemistry*, soumis.
- [28] *Description des modèles conceptuels du milieu géologique, Rapport C RP ADS 99.011*, Andra, **1996**.



Norbert Clauer

est directeur de recherche au CNRS, Centre de géochimie de la surface de Strasbourg*, et consultant à l'Andra.

* EOST, Centre de géochimie de la surface, CNRS UMR 7517, 1 rue Blessig, 67084 Strasbourg Cedex.
Tél. : 03 90 24 04 33. Fax : 03 90 24 04 02.

Courriel : nclauer@illite.u-strasbg.fr

2^e Journée « Arômes et parfums » 17 juin 2005, Nice-Sophia Antipolis

Les scientifiques du pôle Arômes, Saveurs, Parfums, Cosmétiques et Produits aromatiques, se réuniront autour de thèmes porteurs et d'actualité : chimie organique, chimie analytique, techniques d'extraction, produits naturels, formulation, législation. L'objectif de cette journée est de prendre en compte les souhaits des professionnels du secteur des arômes et parfums dans un cadre propice aux échanges.

• <http://aromesetparfums.over-blog.com/>

Contact : Xavier Fernandez. Tél. : 04 92 07 64 69. Courriel : xavier.fernandez@unice.fr