

Influence de la teneur en eau sur les propriétés électriques complexes des matériaux argileux : un état des connaissances

Stephen RAZAFINDRATSIMA^{§*}, Philippe COSENZA*, Gagrik HOVHANNISSIAN[§], Christian CAMERLYNCK* et Alain TABBAGH*

[§] UR Geovast, Institut de Recherche pour le Développement, Bondy, France

*UMR 7619 Sisyphe, Université Pierre et Marie Curie, Paris, France

Abstract

This communication proposes an overview on the electrical complex properties (complex conductivity σ and complex permittivity ε) of clayey soils in relation with their water content. In the low frequency domain (dc up to 10 kHz), all the experimental results, considering both saturated and unsaturated samples, confirm that a surface conductivity likely associated with the so-called electrical double layer has to be taken into account. Moreover, the real part of ε can reach very high values (up to 1000) when the frequency is decreasing. In the high frequency domain (10 MHz to 1 GHz), the complex permittivity is an increasing function of water content ~~in a first order~~ and shows a dispersive behaviour: the complex dielectric permittivity is frequency dependent. The higher the cationic exchange capacity the more dispersive the clayey soil. The main underlying physical phenomenon, which controls the dielectric dispersion is still a subject of considerable debates.

Introduction

Les données relatives aux propriétés électriques des milieux argileux sont nombreuses mais dispersées ~~car étudiées par~~ plusieurs communautés : géophysiciens (du monde pétrolier surtout), physiciens et électrochimistes des milieux colloïdaux, physiciens des sciences du sol. La présente communication vise à établir une brève synthèse sur les acquis expérimentaux et théoriques obtenus sur les propriétés électriques complexes des milieux granulaires argileux. Elle se divise en trois parties. La première partie rappelle les différentes terminologies utilisées en la matière. La deuxième partie présente les résultats obtenus sur la résistivité complexe dans le domaine des basses fréquences (typiquement du domaine du courant continu à 10 kHz). La troisième partie s'intéresse à la permittivité complexe mesurée dans le domaine des hautes fréquences (typiquement de 10 MHz à 1 GHz). Pour ces deux domaines de fréquence, on s'attachera à dégager ~~systematiquement~~ l'influence de la teneur en eau.

1. Quelques définitions

Il est bien connu que les sols et les roches se comportent à la fois comme des conducteurs électriques purs mais aussi comme des diélectriques. Pour rendre compte de cette aptitude à

se laisser traverser par un courant électrique et à se polariser, on introduit alors les concepts (interchangeables) de conductivité électrique complexe, σ^* , de résistivité complexe, ρ^* , ou encore de permittivité complexe ε^* (e.g. Ruffet *et al.*, 1991) :

$$\sigma^* = \frac{1}{\rho^*} = i\omega\varepsilon^* \quad (1)$$

avec ω : la pulsation et $i = \sqrt{-1}$. On notera que ces propriétés complexes mesurées peuvent s'écrire en termes d'amplitude et de phase ou encore en termes de partie réelle ou de partie imaginaire. Par exemple, on a pour la conductivité complexe :

$$\sigma^* = |\sigma| e^{i\phi} = \sigma' + i\sigma'' \quad (2)$$

La partie réelle σ' est associée à la conduction des charges électriques dont la direction est en phase avec le champ électrique appliquée \vec{E} . La partie imaginaire σ'' est liée aux courants de déplacement qui sont déphasés de 90° par rapport au ~~avec le~~ champ électrique appliqué.

Une des difficultés majeures de la comparaison des données issues de la bibliographie tient à l'utilisation par les auteurs d'une des trois grandeurs σ^* , ρ^* et ε^* , qui reposent sur les mêmes phénomènes physiques. Toutefois, dans les domaines des hautes fréquences, l'emploi du concept de permittivité complexe est privilégié alors que dans le domaine des basses fréquences, on préfère utiliser la conductivité ~~complexe~~ ou la résistivité complexes.

2. Le domaine des basses fréquences

Outre la conduction électrolytique (*i.e.* conduction des charges électriques dans le liquide interstitiel), les mécanismes mis en jeu ~~au niveau microscopique à la petite échelle~~ dans le domaine des basses fréquences sont (a) les transferts de charges ou ~~d'~~ ions en solution à l'interface électrode/électrolyte (ou encore ~~le~~ phénomène de polarisation dit d'électrode) et (b) les interactions physico-chimiques entre les ions en solutions et la surface des minéraux argileux. La première classe de mécanismes qui n'est pas spécifique aux matériaux argileux est considérée comme un phénomène parasite qu'il convient de minimiser grâce à l'emploi de systèmes dits à 4 électrodes et à l'utilisation d'électrodes impolarisables (~~par exemple en Platine ou~~ Ag-AgCl).

Très schématiquement, la seconde classe de mécanismes recouvre à la fois (i) les transferts de charges à la surface des minéraux (*i.e.* la conduction dite de surface), (ii) les phénomènes de polarisation dus à la redistribution locale des cations compensateurs dans la double couche diffuse lorsqu'un champ électrique macroscopique est appliqué (*i.e.* déformation du nuage de cations de la double couche diffuse), et enfin (iii) les interactions entre les ions mobiles en solution dans le liquide interstitiel et les cations compensateurs ~~de prisonniers dans~~ la double couche.

Cette famille de mécanismes se traduit macroscopiquement par les observations expérimentales suivantes :

- ~~En courant continu et pour un milieu saturé, aux~~ Les données expérimentales ~~obtenues correspond en courant continu autorisent~~ l'introduction d'un terme additif de conductivité de surface ~~de la façon suivante dans le cas saturé~~ (e.g. Waxman et Smits, 1968) :

$$\sigma' = \frac{\sigma_w}{F} + \sigma'_{suf} \quad (3)$$

La contribution de la conduction de surface σ'_{suf} est *a priori* une fonction ~~compliquée~~ de la surface spécifique, de la densité de charge (*i.e.* de la capacité d'échange cationique, CEC) et de la mobilité des ions (e.g. Revil *et al.*, 1998).

- Il existe une valeur critique de la teneur en eau volumique, comprise entre 20 et 30 % pour laquelle la conductivité électrique σ' augmente de manière drastique. Les valeurs

de ces seuils, que l'on pourrait assimiler à des seuils de percolation, sont cohérentes avec les résultats de Mc Carter (1984).

- Plus généralement, les fonctions $\sigma^*(\omega)$ et $\rho^*(\omega)$ dépendent de la surface spécifique, de la densité de charges et de la nature du cation compensateur (Klein et Sill, 1982 ; Olhoeft, 1985).
- La teneur en eau semble avoir un effet mineur sur les variations de σ' avec la fréquence. Les résultats de Arulanandan et Mehran (1977) suggèrent que le rapport sans dimension $\frac{\sigma'(f=0.1kHz) - \sigma'(f=1kHz)}{\sigma'(f=0.1kHz)}$ dépend peu de la teneur en eau. De même, Iliceto *et al.*

(1982) montrent que la chargeabilité, un des paramètres importants issus de l'inversion de données de la Polarisation Provoquée est peu influencé par la teneur en eau. Ces résultats mériteraient d'être validés sur une gamme de teneur en eau et de fréquence plus étendue, en considérant plusieurs types de minéraux argileux. L'influence de la teneur en eau sur la partie imaginaire σ'' reste encore inconnue.

- La partie réelle de la permittivité relative, κ' ($=\epsilon'/\epsilon_0$ avec ϵ_0 la permittivité du vide) de matériaux argileux augmente sensiblement lorsque la fréquence du champ électrique exciteur tend vers 0. Le paramètre κ' peut prendre alors des valeurs extrêmement élevées, parfois supérieures à 1000. C'est un résultat expérimental ancien obtenu sur des suspensions (e.g. Schwarz, 1962) et qui été observé sur des matériaux purs et des sols argileux (e.g. Tabbagh, 1994). Cette augmentation de κ' avec la diminution de la fréquence est amplifiée par la présence d'eau en quantité plus importante.

2. Le domaine des hautes fréquences

Dans le domaine des hautes fréquences, l'effet « Maxwell-Wagner » est souvent utilisé pour interpréter les courbes de permittivité complexe ϵ^* en fonction de la fréquence. Cet effet est fonction de la tortuosité associée au parcours des ions dans la solution interstitielle. Plus ce parcours est compliqué, et plus important est l'effet d'accumulation de charges sur les parois des pores (e.g. Ruffet *et al.*, 1991). L'effet « Maxwell-Wagner » induit macroscopiquement une dispersion diélectrique *i.e.* une diminution de κ' avec la fréquence.

Toutefois, Campbell (1990) qui a travaillé sur ~~est probablement le premier auteur à avoir mesuré sur des sols argileux~~, la permittivité complexe, ϵ^* , de sols argileux dans la gamme 1-50 MHz, n'invoque pas un tel effet pour expliquer ses résultats. Selon lui, la conduction électrolytique serait à l'origine de la dispersion diélectrique observée.

Wensik (1993) a confirmé les résultats expérimentaux de Campbell sur une gamme de fréquences plus large (1 MHz-3 GHz) et situe le processus de dispersion autour de 3 MHz pour les sols argileux étudiés. Ses données corroborent aussi celles de Campbell quant à l'influence de la teneur en eau : plus la teneur en eau du sol est élevée plus la dispersion diélectrique est importante.

Fam et Santamarina (1997) ont mis en évidence l'effet de la contrainte mécanique sur le même phénomène de dispersion. Saarenketo (1998) est un des rares auteurs à avoir mesuré sur les mêmes sols argileux la permittivité complexe et la conductivité électrique. A partir d'un analyseur de réseau sur une gamme de fréquence 12 MHz-3 GHz, l'auteur a suivi l'évolution de κ' , κ'' et σ' en fonction de la teneur en eau des sols. Saarenketo a établi les résultats suivants :

- Les propriétés κ' , κ'' et σ' sont au premier ordre des fonctions croissantes de la teneur en eau.
- Plus le matériau possède une CEC élevée, plus il est dispersif ; la minéralogie des argiles et les interactions à l'interface solide-eau interstitielle jouent ainsi un rôle majeur.

- Une forte bonne corrélation a été établie entre la partie imaginaire et la CEC. La partie imaginaire κ'' est donc directement liée à ces mêmes interactions.
- La densité apparente des argiles a une influence significative sur la courbe permittivité électrique - teneur en eau pondérale.

Conclusion

Cette étude aura permis de montrer que :

- pour le domaine des basses fréquences, l'influence de la teneur en eau sur les propriétés complexes σ^* et ρ^* n'est pas encore tout à fait comprise bien caractérisée. Ceci tient encore à l'existence de trop peu de données expérimentales sur cet aspect. Nous avons la conviction que la compréhension et donc la modélisation de σ'_{surf} dans l'équation (4) passe aussi par la compréhension des mécanismes gouvernant σ^* et qui donnent à cette propriété un i.e. en intégrant le caractère complexe de cette grandeur.
- pour le domaine des hautes fréquences, l'influence de la teneur en eau sur κ^* a été largement plus étudiée. Toutefois, les mécanismes physiques sous jacents dans la relation κ^* -teneur en eau ne sont pas encore clairement identifiés. Les travaux de Tabbagh *et al.* (2000) et plus récemment de Cosenza *et al.* (2003) suggèrent d'une part que la conductivité électrolytique ne peut expliquer à elle seule la dispersion de κ^* et d'autre part que la morphologie de la phase liquide joue un rôle majeur.

Bibliographie

- Arulanandan K., Mehran M., 1977. Low frequency conductivity dispersion in clay-water-electrolyte systems. *Clays and Clay Minerals*, 25, 39-48.
- Campbell J.J., 1990. Dielectric properties and influence of conductivity in soils at one to fifty megahertz. *Am. J. soil Sci.* 54, 332-341.
- Cosenza P., Camerlynck C., Tabbagh A., 2003, Differential effective schemes for investigating the relationship between high frequency relative permittivity and water content in unsaturated soils. *Water Resour. Res.*, sous presse accepté pour publication.
- Fam M., Santamarina J.C., 1997. A study of consolidation using mechanical and electromagnetic waves. *Géotechnique*, 47, 203-219.
- Klein J.D., Sill W.R., 1982. Electrical properties of artificial clay-bearing sandstone. *Geophysics*, 47, 11, 1593-1605.
- Illiceto V., Santarato G., Veronese S., 1982. An approach to the identification of fine sediments by induced polarization laboratory measurements. *Geophysical Prospecting*, 30, 331-347.
- Mc Carter W.J., 1984. The electrical resistivity characteristics of compacted clays. *Géotechnique*, 32, 2, 263-267.
- Olhoeft G.R., 1985. Low-frequency electrical properties. *Geophysics*, 50, 12, 2492-2503.
- Revil A., Cathles III L.M., Losh S., 1998. Electrical conductivity in shaly sands with geophysical applications. *J. Geophysical Res.*, 103, 23925-23936.
- Ruffet C., Guéguen Y., Darot M., 1991. Complex measurements and fractal nature of porosity. *Geophysics*, 56, 758-768.
- Saarenketo T., 1998. Electrical properties of water in clay and silty soils. *Journal of Applied Geophysics*, 40, 73-88.
- Schwarz G., 1962. A theory of the low-frequency dielectric dispersion of colloidal particles in electrolyte solution. *J. Phys. Chem.*, 66, 2636-2642.
- Tabbagh A., 1994. Simultaneous measurement of electrical conductivity and dielectric permittivity of soils using a slingram electromagnetic device in medium frequency range. *Archeometry*, 36, 1, 159-170.

- Tabbagh A., Camerlynck C., Cosenza Ph., 2000. Numerical modelling for investigating the physical meaning of the relationship between relative dielectric permittivity and water content of soils. *Water Resour. Res.*, 36(9), 2771-2776.
- Waxman M.H., Smits A., 1968. Electrical conductivities in oil bearing shaly sand. *Soc. Petr. J.*, 8, 107-122.
- Wensik W.A., 1993. Dielectric properties of wet soils in the frequency range 1-3000 MHz, *Geophysical Prospecting*, 41, 671-696.