

**Chemical compaction of illite shale: An
experimental study**

A dissertation submitted to

ETH ZURICH

for the degree of

Doctor of Sciences

presented by

ROLF HENDRIK CORNELIS
BRUIJN

M.Sc. Earth Sciences,
Utrecht University, the Netherlands

Date of birth 05.05.1983

Citizen of the Netherlands

accepted on the recommendation of

Prof. Dr. Jean-Pierre Burg	examiner
Dr. Philip M. Benson	co-examiner
Dr. Dan Faulkner	co-examiner

Abstract

Sediment diagenesis has been classified nearly a century ago as a key process for the formation of rocks. In response to burial by overlying younger deposits, both mechanical and chemical processes contribute to the compaction and consolidation of sediments, the degree of which is controlled by both intrinsic and extrinsic parameters such as time, effective pressure, temperature, mineral composition and grain size distribution. Rock physical properties are strongly affected by clay diagenesis. So far, only the mechanical processes during clay diagenesis that dominate in the top 2-3 km of the sedimentary column have been simulated in the laboratory. However, studies on natural shales and mudstones have also emphasized the importance of chemical processes for diagenesis, although occurring in deeper domains and controlled more by temperature than by effective stress. Foreland basins are typical examples of a tectonic setting where sediments are buried deep enough for the activation of chemical processes. The effect of tectonic forces (deformation) on diagenesis is however enigmatic and to date poorly constrained by experimental simulation. The present study simulates the chemical processes in the laboratory and examines how tectonic forces affect compaction processes that transform porous illite shale powder into compact crystalline metapelite.

The experimental compaction procedure consists of three stages. In the first compaction stage, dry illite shale powder (originating from Maplewood Shale, New York, USA) was mechanically compacted in a hydraulic cold-press with a vertical load of 200 MPa. The second stage employed a hot isostatic press (HIP) set at 170 MPa confining pressure and 590 °C, and ensured powder lithification. In the final stage, further compaction was achieved by either repeating HIP treatment or by performing confined deformation tests in a Paterson-type gas-medium apparatus. During the second HIP event temperature and pressure were set at 490 °C and 172 MPa. In the Paterson apparatus three different stress regimes were applied: confined compression, confined torsion or isostatic stress. For the first two regimes, deformation was enforced by applying a constant strain rate ranging from 7×10^{-6} to $7 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$. Experiments were performed at 300 MPa confining pressure and a fixed temperature of 500 °C, 650 °C, 700 °C or 750 °C. These conditions were chosen from a thermodynamic forward simulation of the stability of mineral phases. In some Paterson apparatus tests, the effects of fluid availability and effective pressure were tested by respectively venting the sample or applying a 50 MPa argon pore pressure.

Lithified samples were analyzed for their microstructural, chemical and physical development with compaction using scanning electron microscopy, Karl Fisher Titration, X-ray diffraction and gas pycnometry. Sample strength evolution was recorded during Paterson apparatus tests and strain measured afterwards. The magnetic signature of the compacting metapelites was quantified by measuring low and high-field anisotropy of magnetic susceptibility (AMS), and the ferrimagnetic contributions were identified using rock magnetic methods.

The three-stage compaction resulted in synthetic metapelites ranging in porosity from 1.0 % to 17.1 %. Linear increase in density and strong correlation between volumetric strain and pore reduction indicate that compaction was accommodated primarily by pore space closing. In deformation experiments axial strain was accommodated first by uniaxial shortening following pore collapse and later by radial extension, which in some cases resulted in total decompaction. Illite transformation to phengite and fluid assisted mass transfer resulted in diffusion creep type strain accommodation. Mechanical pore closing is characterized by pronounced compaction hardening and partial pore recovery upon unloading. Porosity reflects the progress of illite transformation, which is accompanied by enhanced mica alignment and shape preferred authigenic quartz. The AMS signal carried by the phyllosilicates increases linearly with compaction, quantifying the development of texture and reflecting illite preservation. Deformation structures accommodate strain as alternative to exhausted or delayed pore space reduction processes. The smallest visible pores in SEM, associated with illite flakes, diminished as compaction progressed; larger pores were preserved.

Chemical compaction can be simulated in the laboratory provided mineral transformation processes are sufficiently enhanced. In this, differential stress (tectonic force) acts merely as accelerant. There is no evidence for otherwise altered fabric and porosity/density development with the application of differential stress, in comparison with isostatically compacted metapelites.

Kurzfassung

Die Sedimentdiagenese gilt schon seit fast einem Jahrhundert als Schlüsselfaktor für die Gesteinsbildung. Mechanische und chemische Prozesse führen zu einer Kompaktion und Konsolidation der Sedimente aufgrund von Überlagerung durch jüngere Sedimente. Dieser Prozess wird durch innere und äussere Parameter wie effektiver Druck, Temperatur, Mineralzusammensetzung und Korngrössenverteilung kontrolliert. Die physikalischen Eigenschaften toniger Sedimente verändern sich während der Diagenese sehr stark. Bis anhin wurde im Labor nur die mechanischen Prozesse während der Diagenese von Tonsedimente simuliert. Studien über natürliche Tonsteine jedoch heben die Wichtigkeit chemischer Prozesse während der Diagenese vor allem in tieferen Lagen hervor, welche hauptsächlich von der Temperatur und weniger vom effektiven Druck kontrolliert wird. Vorlandbecken sind typische Beispiele für tektonische Settings, wo Sedimente tief genug versenkt werden, um chemische Prozesse zu aktivieren. Der Einfluss tektonischer Kräfte (Deformation) auf die Diagenese ist jedoch weitgehend unbekannt und bis jetzt experimentell nur wenig untersucht. Diese Studie simuliert die chemischen Prozesse der Diagenese im Labor und untersucht, wie sich tektonische Kräfte auf Kompaktionsprozesse auswirken, bei denen porenreiches Illitpulver in kompakte kristalline Metapelite umgewandelt wird.

Die experimentelle Kompaktion besteht aus drei Schritten: Im ersten Kompaktionsschritt wurde das trockene Illitpulver (Material aus Maplewood Shale, New York, USA) mechanisch in einer hydraulischen Presse bei Raumtemperatur mit einer vertikalen Belastung von 200 MPa verdichtet. Für den zweiten Schritt wurde eine Sinter-HIP-Kompaktanlage (HIP) mit 170 MPa Druck und 590 °C verwendet. Dieser Schritt garantiert die Lithifizierung des Pulvers. Eine stärkere Kompaktion im letzten Schritt wurde entweder durch Wiederholung des zweiten Schrittes mit der HIP oder durch Deformationstests in einem Apparat vom Typ Paterson erreicht. Im zweiten HIP-Durchgang wurden Temperatur und Druck auf 490 °C und 172 MPa eingestellt. Mit dem Paterson-Apparat wurden drei verschiedene Belastungszustände getestet: Kompression, Torsion oder Druck. Die Proben wurden für die ersten beiden Zustände mit einer konstanten Verformungsrate zwischen $7 \times 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ und $7 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ deformiert. Die Experimente wurden bei 300 MPa Druck und bei konstanten Temperaturen von 500 °C, 650 °C, 700 °C oder 750 °C durchgeführt. Diese Bedingungen wurden aufgrund eines thermodynamischen Modells gewählt, das die Stabilitäten der Mineralphasen berechnet. Bei einigen Tests mit dem Paterson-Apparat wurde der Einfluss von Fluiden und effektivem Druck getestet.

Die lithifizierten Proben wurden auf mikrostrukturelle, chemische und physikalische Veränderungen mit zunehmender Kompaktion analysiert. Die Analysen wurden mit dem Rasterelektronenmikroskop, Karl-Fischer-Titration, Röntgenbeugung und einem Pyknometer durchgeführt. Die Veränderung der Probenfestigkeit wurde während der Tests im Paterson-Apparat ermittelt und die Deformation jeweils nachträglich bestimmt. Das magnetische Gefüge des kompakten

Metapelites wurde als magnetische Anisotropie (AMS) in hohem und tiefem magnetischem Feld gemessen und der ferromagnetische Beitrag mit Hilfe von petromagnetischen Methoden identifiziert.

Mit diesem Drei-Schritte-Kompaktionsverfahren wurden Metapelite mit einer Porosität von 1.0% bis 17.1% hergestellt. Die lineare Zunahme der Dichte und eine starke Korrelation zwischen Volumenänderung und Porenreduktion weist darauf hin, dass die Kompaktion primär auf Porenschliessung zurückzuführen ist. In den Deformationsexperimenten ging die axiale Belastung anfänglich mit uniaxialer Verkürzung einher, gefolgt vom Schliessen der Poren und anschliessender radialer Extension, die in einigen Fällen in totaler Dekompaktion resultierte. Die Transformation von Illit zu Phengit und der fluid-unterstützte Massentransfer resultierten in Verformung durch Diffusionskriechen. Die mechanische Porenschliessung hingegen ist charakterisiert durch starke Kompaktionsverfestigung und teilweise Porenerholung nach der Entlastung. Die Porosität spiegelt den Prozess der Illittransformation wider, welche von erhöhter Glimmereinregelung und Neuwachstum von Quarz mit Kornformregelung begleitet wird. Das AMS-Signal der Phyllosilikate steigt linear mit zunehmender Kompaktion an, quantifiziert die Entwicklung der Struktur und gibt die Illiterhaltung wieder. Die Deformationsstrukturen entstehen als Alternative zu abgeschlossenen oder verzögerten Poren-Reduktionsprozessen.

Die kleinsten unter dem SEM erkennbaren, mit Illitplättchen assoziierten Poren verringerten sich während des Kompaktionsprozesses; grössere Poren blieben erhalten.

Die chemische Kompaktion kann im Labor unter der Voraussetzung simuliert werden, dass die Mineraltransformationsprozesse genügend beschleunigt werden. Die Anlegung einer differentiellen (tektonischen) Spannung wirkt dabei beschleunigend. Es gibt keinerlei Anzeichen dafür, dass sich davon abgesehen das Gefüge und die Porosität/Dichte unter differentieller Belastung anders entwickeln als bei isostatischer Kompaktion.