

SURFACE ÉLÉMENTAIRE REPRESENTATIVE STATISTIQUE DES ROCHES ARGILEUSES

STATISTICAL REPRESENTATIVE ELEMENTARY AREA OF CLAY ROCKS

Philippe COSENZA¹, Dimitri PRET¹, Anne-Laure FAUCHILLE², Stephen HEDAN¹, Albert GIRAUD³

¹ Université de Poitiers, UMR CNRS 7285 IC2MP- HydrASA, ENSI Poitiers, France.

² Ecole Centrale de Nantes, UMR CNRS 6183 Institut de Recherche en Génie Civil (GEM), Nantes, France.

³ Université de Lorraine (ENSG), CNRS, CREGU, GeoRessources, Vandoeuvre-les-Nancy, France.

RÉSUMÉ – Des tailles de la Surface Élémentaire Représentative (SER) de l'argilite de Tournemire, L_{SER} , ont été calculées à partir d'une carte de minéraux suivant la méthode dite des boîtes et suivant l'approche statistique de Kanit et al. (2003). Les valeurs de L_{SER} mécanique associées au module de compressibilité et au module de cisaillement sont significativement supérieures à celles du L_{SER} -morphologique associée à la fraction d'argile.

ABSTRACT – Sizes of the Representative Elementary Area (REA), L_{REA} , of Tournemire argillite were calculated from a mineral map using the counting box method and the statistical approach of Kanit et al. (2003). The mechanical L_{REA} values associated with the bulk modulus and the shear modulus are significantly higher than those of the morphological L_{REA} associated with the clay fraction.

1. Introduction

Les roches argileuses sont actuellement étudiées en tant que roches hôtes potentielles pour le stockage de déchets radioactifs dans plusieurs pays industriels et constituent souvent la principale couverture étanche de nombreux réservoirs d'hydrocarbures. Ces formations géologiques sont très hétérogènes suivant plusieurs échelles d'espace et au regard de la complexité de leur organisation texturale, la prédiction de leurs propriétés mécaniques à partir de leur microstructure reste clairement un enjeu scientifique majeur.

Dans le travail présenté ici, nous nous sommes concentrés sur l'échelle mésoscopique (typiquement entre 10 μm et 1 mm) pour laquelle de nombreuses études théoriques ont été consacrées aux calculs de propriétés dites effectives (e.g., Cosenza et al., 2015). Toutes ces études mettant en œuvre des techniques de changement d'échelle ou d'homogénéisation sont basées sur le concept de volume élémentaire représentatif (VER) ou surface élémentaire représentative (SER) en 2D, nécessaire pour «séparer» deux échelles spatiales: l'échelle de l'hétérogénéité, c'est-à-dire celle des grains non argileux (ou inclusions rigides) dans notre cas, et l'échelle de l'ingénieur pour laquelle la roche argileuse est considérée comme un milieu continu homogène.

La présente communication apporte de nouvelles estimations de la taille de SER obtenues sur une roche argileuse étudiée dans le cadre du stockage géologique de déchets radioactifs: l'argilite du Toarcien de la station expérimentale de Tournemire de l'IRSN (Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire). Les tailles de SER, nommées L_{SER} , ont été calculées à partir d'une carte de minéraux suivant la méthode classique de la «méthode des boîtes» et d'une approche statistique qui introduit le concept d'une SER «statistique» suivant l'approche décrite dans Kanit et al. (2003).

2. Matériau et méthodes

2.1. Matériau

La roche étudiée est l'argilite du massif de Tournemire, appartenant au bassin sédimentaire permio-mésozoïque de la région des Grands Causses situé dans l'Aveyron (France). Sa minéralogie est dominée par les phyllosilicates (20-50%) dont la kaolinite, l'illite et les interstratifiés illite/smectite, les tectosilicates (10-50%) dont le quartz et les feldspaths, les carbonates (10-30%, principalement de la calcite) et les sulfures (2-7%) (e.g., Fauchille, 2015). La roche présente une structure litée avec une alternance entre des lits carbonatés et des lits plus argileux d'environ 200 à 400 μm . L'échantillon utilisé pour la réalisation d'une carte de minéraux a été fourni par l'IRSN et provient du forage FD90 de la galerie Est 1996 entre 4.20 et 4.40 mètres de profondeur.

2.2. Méthodes

2.2.1. Cartographie minéralogique au MEB

Les minéraux de la roche étudiée ont été cartographiés au Microscope Electronique à Balayage (MEB) (JEOL JSM 56000LV) en électrons rétrodiffusés. Le mode d'analyse en électrons rétrodiffusés est sensible au numéro atomique moyen des minéraux sous forme de niveaux de gris. La totalité de la surface cartographiée constitue une image mosaïque de 8806x6605 pixels². L'image mosaïque a été construite à partir de 159 images de 1024x768 pixels² avec une résolution de 0.625 μm .pixel⁻¹. Un seuillage de la matrice argileuse, des grains et des macropores a été réalisé à partir de la mosaïque avec le logiciel $\mu\text{PHASEmap}$ développé à l'institut IC2MP (Prêt et al. 2010).

La carte minérale utilisée dans cette étude concerne une extraction (4000x4000 pixels², 2500x2500 μm^2) de la partie la plus homogène de la mosaïque afin de respecter au mieux l'hypothèse d'homogénéité statistique supposée dans tous les calculs tailles de SER (Figure 1). Notez que la carte a été préparée à partir d'une section polie dans un plan perpendiculaire au plan stratigraphique. La direction x indiquée sur la figure 1 est parallèle au litage, alors que la direction z est perpendiculaire au litage.

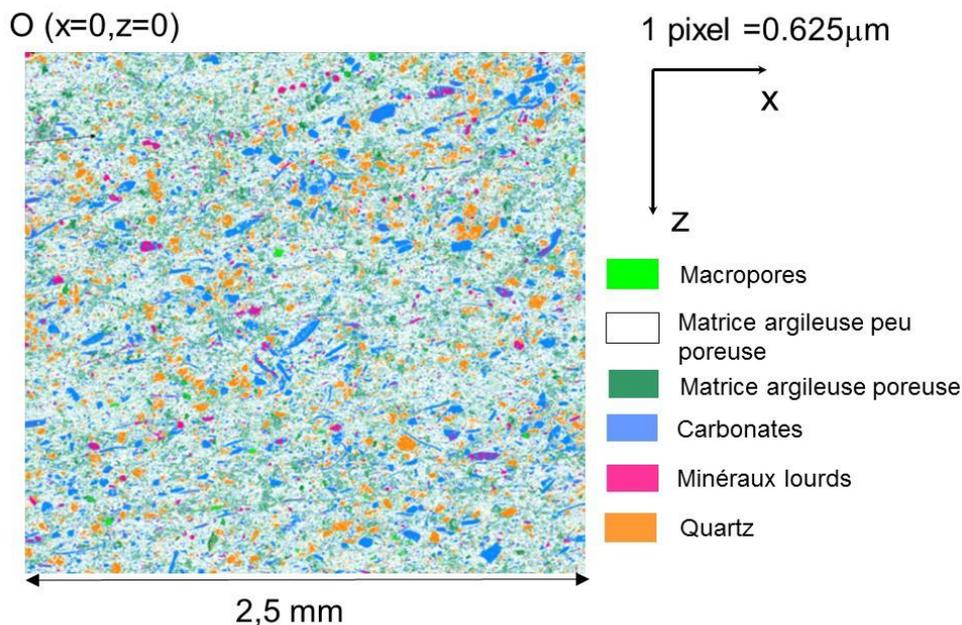


Figure 1. Carte de minéraux utilisée (d'après Fauchille, 2015)

2.2.2. Méthodes de détermination de la taille de SER

Méthode des boîtes

La méthode dite des boîtes, qui est probablement la plus populaire pour estimer la taille L_{SER} , commence à partir d'un sous-domaine donné dans l'image numérisée (ici la carte de minéraux pixélisée). Ensuite, la moyenne d'une propriété de surface (e.g., fraction surfacique d'un minéral, porosité de surface, propriété physique, etc.) est calculée dans des sous-domaines de taille croissante, souvent appelés boîtes, jusqu'à ce que la taille complète de l'image soit atteinte. La taille caractéristique L_{SER} est considérée comme atteinte lorsque la moyenne de la propriété considérée n'évolue pas de manière significative avec l'augmentation de la taille de boîtes (e.g., Fauchille, 2015).

Dans notre cas, cette procédure a été répétée pour quatre sous-domaines initiaux (Figure 2) afin de s'assurer que la taille L_{SER} déduite était statistiquement représentative de l'image entière. La propriété considérée dans les calculs fut la fraction surfacique d'argile.

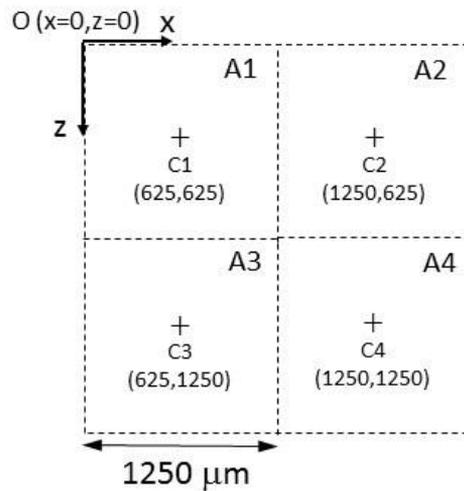


Figure 2. Partition de la carte de minéraux pour les calculs de L_{SER} .

Méthode statistique de Kanit et al. (2003)

Suivant cette méthode, une SER «statistique» est liée non seulement à la microstructure et aux propriétés de chacun des constituants de la roche, mais surtout à une précision donnée dans l'estimation de la propriété effective (ou propriété moyenne à l'échelle de l'ingénieur). Cette précision dans la détermination de la propriété effective est elle-même fonction du nombre de réalisations que l'on est prêt à générer pour calculer la propriété effective en question. Le concept probabiliste de réalisation est ici, d'un point de vue pratique, un sous-domaine d'une carte de minéraux dans lequel les propriétés morphologiques ou mécaniques apparentes (dans notre cas, module de compressibilité et module de cisaillement) doivent être calculées. Dans cette étude, les modules élastiques apparents d'un sous-domaine d'une carte de minéraux ont été estimés à l'aide d'un modèle micromécanique basé sur une approche différentielle (Cosenza et al., 2019).

Afin d'expliquer simplement et brièvement cette approche, considérons différentes réalisations (sous-domaines) d'une fonction aléatoire ergodique et stationnaires, $Z(x)$ (ici fraction surface d'argile ou modules élastiques) et intéressons-nous aux fluctuations spatiales obtenues sur une mesure moyenne obtenues sur ces sous-domaines. Ces fluctuations spatiales sont décrites par la variance de cette propriété moyenne qui dépend de la taille du sous-domaine considérée et de la portée intégrale A_2 de $Z(x)$ (Kanit et al., 2003, Jeulin et al., 2004):

$$D_Z^2(S) = D_Z^2 \left(\frac{A_2}{S} \right)^\alpha \quad (1)$$

Avec $D_Z^2(S)$: la variance de la valeur moyenne $Z(S)$ de la fonction $Z(x)$ sur la surface S ;
 α : un exposant d'ajustement ($\alpha=1$ pour des propriétés surfaciques additives comme la fraction surfacique d'argile ; $\alpha \neq 1$ pour les propriétés élastiques considérées) ; D_Z^2 : la variance en point de $Z(x)$ donnée analytiquement pour un matériau à deux phases possédant les propriétés physiques Z_1 et Z_2 (Kanit et al., 2003, Jeulin et al., 2004):

$$D_Z^2 = P(1 - P) (Z_1 - Z_2)^2 \quad (2)$$

P est la proportion de phase 1 ou de phase 2. Dans notre cas, les deux phases considérées sont la phase argileuse et la phase non argileuse composée essentiellement d'inclusions de quartz et de calcite.

Le calcul de la taille de la SER sera effectué pour une propriété physique donnée (ici fraction surface d'argile ou modules élastiques), pour un contraste déterminé entre les phases considérées (phase argileuse et phase non argileuse) et pour une précision désirée sur l'estimation de la propriété effective. Suivant la théorie de l'échantillonnage, l'erreur relative sur une valeur moyenne avec n réalisations de surface S est donnée par :

$$\varepsilon_{rel} = \frac{2 D_Z(S)}{\bar{Z} \sqrt{n}} \quad (3)$$

Ainsi, la surface correspondant à la SER, S_{SER} , peut maintenant être définie comme la surface pour laquelle n réalisations ($n= 1$ par exemple) est nécessaire pour obtenir la propriété effective moyenne \bar{Z} avec une erreur relative donnée ($\varepsilon_{rel} = 5\%$ par exemple) à condition que la grandeur $D_Z(S)$ soit connue.

Par exemple, si Z est une propriété physique, le paramètre S_{SER} correspondant, estimé avec une erreur relative donnée ε_{rel} et un nombre donné de réalisation n , peut être déduit en combinant les équations (1), (2) et (3) à condition que la propriété effective moyenne \bar{Z} et la portée intégrale A_2 soient connues. Les détails de la méthodologie et des calculs sont donnés dans Cosenza et al. (2019).

Calculs des propriétés élastiques apparentes

Afin d'obtenir le graphe de la fonction $D_Z^2(S)$, il convient de calculer la propriété apparente Z de chaque sous-domaine. Les propriétés élastiques apparentes ont été obtenues par un modèle micromécanique simple de type différentiel : un modèle d'inclusion dans lequel un grain sphérique non argileux est inséré dans une matrice argileuse isotrope (Cosenza et al., 2019). Les valeurs des propriétés élastiques de ces deux phases (argile et non argile) ont été inversées à l'aide d'un algorithme de type Monte-Carlo dont on présente les résultats dans le tableau 1.

Tableau 1. Données d'entrée et valeurs inversées pour le calcul des propriétés élastiques des phases argileuse et non argileuse

Module élastique macroscopique de référence (Niandou et al., 1997) (GPa)	Module élastique de la phase non –argileuse (GPa)	Module élastique de la phase argileuse (après inversion) (GPa)	Différence relative entre valeur de référence et valeur inversée de la phase argileuse (%)
Module de compressibilité : 9,2	Module de compressibilité : 53,9	Module de compressibilité : 5,3	1,6
Module de cisaillement : 6,5	Module de cisaillement : 37,5	Module de cisaillement : 3,7	0,1

3. Résultats

3.1. Tailles de SER morphologique

On appelle SER morphologique, la SER associée à la fraction surfacique d'argile ϕ . Celle-ci peut être calculée par la méthode des boîtes ou par l'approche dite statistique en considérant $Z = \phi$.

La figure 3 montre les évolutions de la fraction d'argile calculées pour des tailles croissantes de boîte L en considérant les quatre différents domaines de départ notés A_i ($i=1, \dots, 4$) de la carte de minéraux (Figure 1). Cette figure confirme que la fraction d'argile calculée est une fonction décroissante de L et converge vers une valeur asymptotique, ci-après appelée ϕ_∞ qui est très proche de la fraction d'argile moyenne calculée sur l'ensemble de la carte (69,9%).

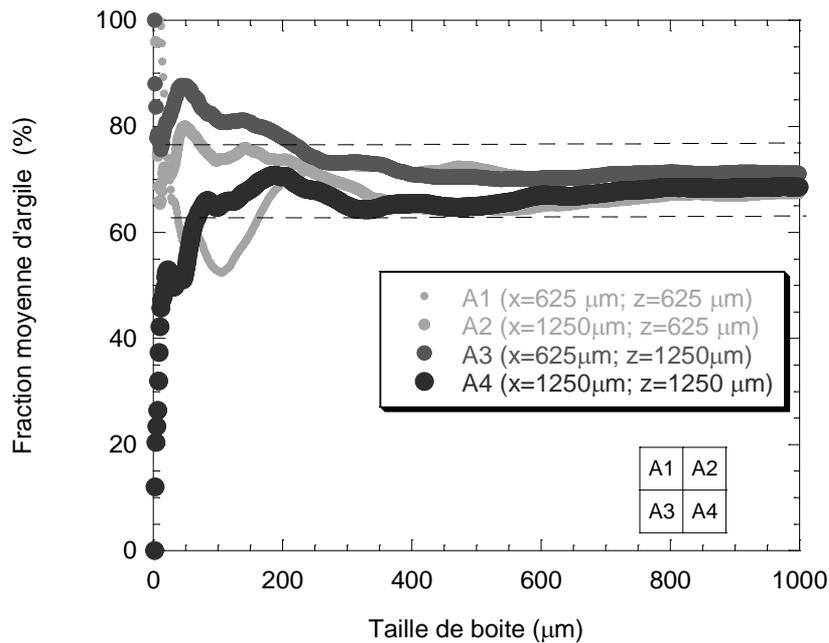


Figure 3. Evolution de la fraction moyenne d'argile en fonction de la taille de boîte pour les quatre zones initiales de la carte (méthode des boîtes). Les coordonnées des centres de chacune des zones sont également indiquées. Les lignes horizontales en pointillé indiquent la gamme correspondant à $(1 \pm \varepsilon)\bar{\phi}_{Toar}$ avec $\bar{\phi}_{Toar} = 0,699$ (69,9%) et $\varepsilon = 0,1$ (10%).

La taille de la SER, c'est-à-dire L_{SER} , a été estimée en deux étapes. Dans la première étape, les tailles de SER ont été calculées pour chacune des quatre zones A_i et pour deux valeurs de seuil ou d'erreur, c'est-à-dire $\varepsilon = 0,1$ (10 %) et $\varepsilon = 0,05$ (5%). Pour chaque zone, le paramètre L_{SER} a été identifié comme la plus petite taille de boîte L pour laquelle la fraction d'argile moyenne calculée était significativement similaire à celle de l'ensemble de la carte (69,9%) avec une erreur maximale de ε . Dans une deuxième étape, la moyenne globale des L_{SER} des quatre zones a été calculée. La L_{SER} moyenne ainsi obtenue a été considérée comme la L_{SER} de la carte étudiée.

Nos résultats donnés dans le tableau 2 indiquent que les valeurs L_{SER} sont dispersées et augmentent lorsque les valeurs d'erreur ou de seuil choisies ε diminuent. En effet, dans le premier cas ($\varepsilon = 0,1$), les valeurs moyennes des estimations de L_{SER} est de 129 µm alors que dans le deuxième cas ($\varepsilon = 0,05$), la valeur moyenne est beaucoup plus élevée, soit 441 µm (tableau 2).

Cette dispersion dans les estimations de L_{SER} peut également être mise en évidence par un calcul de l'écart-type des estimations de L_{SER} associées aux quatre zones. En effet,

les valeurs d'écart type des estimations de L_{SER} augmentent de $72 \mu\text{m}$ ($\varepsilon = 0,1$) à $267 \mu\text{m}$ ($\varepsilon = 0,05$) (tableau 2).

Tableau 2. Estimation de L_{SER} par la méthode des boîtes

Zone (A)	Centre de la zone	Valeur asymptotique φ_∞	L_{SER} (μm) ($\varepsilon = 0,1$)	L_{SER} (μm) ($\varepsilon = 0,05$)
A1	C1 ($x=625\mu\text{m}$, $z=625\mu\text{m}$)	71,4	163	179
A2	C2 ($x=1250\mu\text{m}$, $z=625\mu\text{m}$)	68,5	71	749
A3	C3 ($x=625\mu\text{m}$, $z=1250\mu\text{m}$)	70,2	214	260
A4	C4 ($x=1250\mu\text{m}$, $z=1250\mu\text{m}$)	69,1	68	576
		Moyenne: 69,8 Ecart-type: 1,3	Moyenne: 129,0 Ecart-type: 71,8	Moyenne: 441,0 Ecart-type: 267,4

Cette dispersion questionne l'homogénéité statistique de la carte et pourrait s'expliquer par une évolution faible de la microstructure dans la direction x. Ce dernier aspect s'illustre notamment par les valeurs asymptotiques φ_∞ qui diminuent dans la direction x (tableau 2).

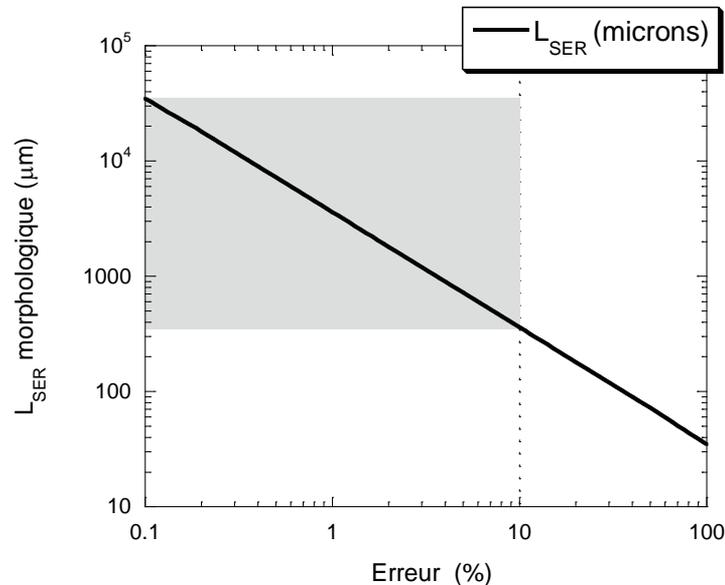


Figure 4. L_{SER} morphologique suivant l'approche statistique en fonction de l'erreur (%) pour une réalisation ($n=1$).

La figure 4 montre les valeurs de L_{SER} estimées par l'approche statistique, en fonction de l'erreur ε (%) pour une unique réalisation ($n=1$). La zone grisée sur la figure 4 indique les valeurs de L_{SER} pour une gamme de ε comprise en 0,1 et 10%. On notera que les valeurs de L_{SER} pour des valeurs de ε de 5% et 10% sont respectivement de $730 \mu\text{m}$ et $350 \mu\text{m}$. Bien que dans le même ordre de grandeur, ces estimations apportées par l'approche statistique sont significativement supérieures à celles données par la méthode classique des boîtes.

3.2. SER morphologique vs SER mécanique

La figure 5 montre l'évolution des valeurs moyennes des modules élastique (module de compressibilité et module de cisaillement) en fonction de la taille L des sous-domaines de surface S. Cette figure révèle deux caractéristiques. D'une part, les valeurs moyennes \bar{K} et \bar{G} tendent rapidement vers des plateaux proches des valeurs de référence pour les grandes valeurs de S (Tableau 1). D'autre part, comme pour la fraction surfacique d'argile,

la dispersion des résultats mécaniques diminue avec l'augmentation de la taille du sous-domaine.

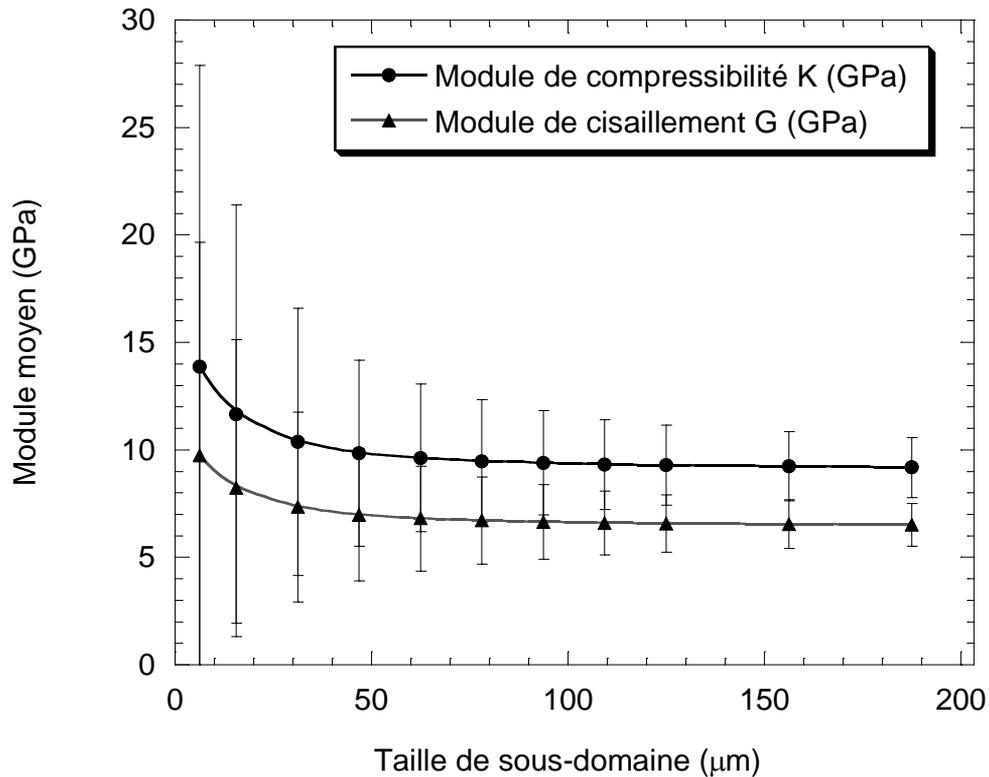


Figure 5. Moyenne (et écart-type) des modules élastiques apparents en fonction de la taille de sous-domaine considéré.

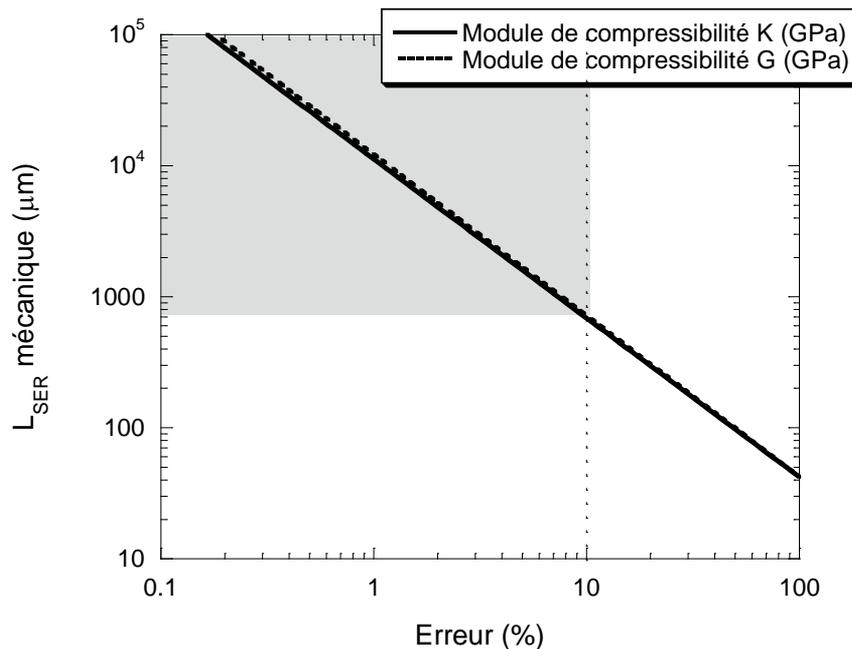


Figure 6. L_{SER} mécanique suivant l'approche statistique en fonction de l'erreur (%) pour une réalisation ($n=1$).

La figure 6 montre les valeurs de L_{SER} mécaniques déduites de l'approche statistique de Kanit et al. (2003). Elle met en évidence au moins deux résultats. D'une part, quel que soit le module élastique considéré et quelle que soit la méthode utilisée pour l'estimation du L_{SER} morphologique, les estimations du L_{SER} mécanique sont significativement

supérieures à celles du L_{SER} morphologique (comparer les figures 4 et 6). Le concept de L_{SER} dépend donc fondamentalement de la propriété physique considéré. D'autre part, les estimations L_{SER} du module de compressibilité et celles du module de cisaillement sont sensiblement équivalentes. La nature du module élastique semble avoir peu d'influence sur la détermination du L_{SER} mécanique (ici élastique).

4. Conclusions

Nos calculs menés à l'échelle mésoscopique ont montré les résultats suivants:

- (i) les valeurs de L_{SER} morphologique (considérant la fraction surfacique d'argile) obtenues par la méthode des boites et par une approche statistique sont dispersées mais du même ordre de grandeur, i.e., de quelques centaines de microns.
- (ii) les valeurs de L_{SER} mécanique associées au module de compressibilité et au module de cisaillement sont significativement supérieures à celles du L_{SER} morphologique. Le concept de L_{SER} dépend donc fondamentalement de la propriété physique considéré,
- (iii) les estimations L_{SER} du module de compressibilité et celles du module de cisaillement sont semblables. La nature du module élastique semble avoir peu d'influence dans notre cas, sur la détermination du L_{SER} mécanique (élastique).

L'ensemble de ces résultats devrait être confirmé sur d'autres cartes de minéraux.

Références bibliographiques

- Cosenza, P., Prêt, D., Giraud, A., Hedan, S. (2015). Effect of the local clay distribution on the effective elastic properties of shales. *Mechanics of Materials*, vol. 84, pp. 55-74.
- Cosenza, P., Fauchille, A. L., Prêt, D., Hedan, S., Giraud, A. (2019). Statistical representative elementary area of shale inferred by micromechanics. *International Journal of Engineering Science*, vol. 142, pp. 53-73.
- Fauchille, A.L., (2015). Déterminismes microstructuraux et minéralogiques de la fissuration hydrique dans les argilites de Tournemire : apports couplés de la pétrographie quantitative et de la corrélation d'images numériques, Thèse de l'Université de Poitiers.
- Kanit, T., Forest, S., Galliet, I., Mounoury, V., Jeulin, D. (2003). Determination of the size of the representative volume element for random composites: statistical and numerical approach. *International Journal of solids and structures*, vol. 40, n°13-14, pp. 3647-3679.
- Niandou, H., Shao, J. F., Henry, J. P., Fourmaintraux, D. (1997). Laboratory investigation of the mechanical behaviour of Tournemire shale. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences*, vol. 34, n°1, pp. 3-16.
- Jeulin, D., Kanit, T., & Forest, S. (2004). Representative volume element: a statistical point of view. In *Continuum Models and Discrete Systems* (pp. 21-27). Springer, Dordrecht.
- Prêt D., Sammartino S., Beaufort D., Meunier A., Michot L. (2010). A new method for quantitative petrography based on image processing of chemical element maps: I. Mineral mapping applied to compacted bentonites, *American Mineralogist*, vol. 95, pp. 1379-1388