

Détermination de la taille et du nombre d'échantillons devant être analysés en laboratoire pour la caractérisation statistique de la microstructure d'une roche argileuse

Anne-Laure Fauchille^{1,2,★}, Bram van den Eijnden³, Kevin Taylor⁴ et Peter David Lee⁵

¹ Institut de recherche en génie civil et mécanique (GeM), Centrale Nantes UMR 6183 CNRS, 1 rue de la Noë, 44300 Nantes, France

² Research Complex at Harwell, Rutherford Appleton Laboratory, Didcot Oxon, OX11 0FA, Royaume-Uni

³ Faculty of Civil Engineering and Geoscience, Delft University of Technology, Stevinweg 1, 2628, Delft, Pays-Bas

⁴ School of Earth and Environmental Sciences, The University of Manchester, Oxford Road, Manchester, M13 9PL, Royaume-Uni

⁵ UCL Mechanical Engineering, Torrington Place, London WC1E 7JE, Royaume-Uni

Résumé – À l'échelle du laboratoire, les roches argileuses sont des matériaux hétérogènes dont le comportement thermo-hydrômeccanique est en grande partie contrôlé par la microstructure. Le choix du nombre et de la taille des échantillons à étudier en laboratoire est déterminant pour appréhender la variabilité des propriétés de la roche argileuse à petite échelle. Cet article présente une méthode statistique permettant de préciser la surface (ou le volume) et le nombre d'échantillons à prendre en compte pour qu'une propriété p choisie caractérisant la microstructure, soit statistiquement représentative. Initialement établie dans un cas général par Kanit *et al.* (2003. *Determination of the size of the representative volume element for random composites: statistical and numerical approach. Int J Solids Struct* 40(13–14): 3647–3679), cette méthode consiste à partitionner un échantillon de propriété moyenne \bar{p} connue, en sous-échantillons de surface $D \times D$ afin de calculer l'écart-type et l'erreur relative de la mesure de p en fonction de D . Cette méthode permet ainsi de définir des surfaces élémentaires représentatives de p en tenant compte de l'erreur relative par rapport à \bar{p} . La méthode est d'abord présentée dans des cas généraux en 2D et 3D, et un exemple type est ensuite développé en 2D pour caractériser la fraction argileuse d'une lamine sédimentaire de Bowland (Royaume-Uni). La fraction surfacique argileuse est choisie comme propriété p , à partir d'une image grand-champ en microscopie électronique à balayage. La méthode est applicable en 2D et 3D sur les matériaux finement divisés autant sur les roches que sur les sols argileux, tant que l'échantillon considéré contient suffisamment d'éléments figurés (inclusions rigides ou pores dans une matrice par exemple) pour permettre l'utilisation des statistiques. L'apport principal visé pour la communauté des ingénieurs est dans la mesure du possible un meilleur ciblage de la quantité d'échantillons à prélever en forage pour mieux évaluer la variabilité des paramètres macroscopiques des roches argileuses. Les limites de la méthode sont ensuite discutées.

Mots clés : roche argileuse / microstructure / statistique / nombre et taille des échantillons

Abstract – **Determination of the size and the number of samples to be analyzed in the laboratory for the statistical characterization of the microstructure of a clayrock.** At the laboratory scale, clayrocks are heterogeneous materials and their thermo-hydrômeccanical behaviour is generally controlled by the microstructure. Choosing the number and size of samples is therefore a key point to both decrease and understand microstructure variability in the laboratory, at small scales. This paper focuses on a statistical method, which consists in dividing numerically an initial sample characterized by a chosen property \bar{p} , in sub-samples of surface $D \times D$ (or volume) characterized by a property of p_i . The variance and relative error of p are calculated as a function of D to determine representative elementary areas (or volumes) of p , which take into account their relative error. A case study is presented on a clay lamina of Bowland Shale (UK). The clay fraction is taken in example to represent p , on a large field view of microstructure acquired under scanning electron microscopy. The method is available in 2D and 3D, on clay rocks and soils. The sample chosen has to contain a significant number of image's particles to use statistics. The main advantage of this method is to target the volume of samples to analyze, in order to characterize the microstructure of such

★ Auteur de correspondance :

anne-laure.fauchille@ec-nantes.fr

heterogeneous rock at the borehole scale, and to evaluate the variability of macroscopic parameters. Limitations of the method are then discussed.

Keywords: clayrock / microstructure / statistics / number and size of samples

1 Points importants

Une méthode permettant la caractérisation statistique de la microstructure des roches argileuses est présentée et appliquée en exemple sur une lamine argileuse de Bowland. L'erreur relative sur la mesure de la fraction argileuse dans des domaines de microstructure indépendants est la même pour peu de domaines de grande taille que pour beaucoup de domaines de petite taille. Lorsque la fraction argileuse est caractérisée expérimentalement par des méthodes d'imagerie à des erreurs relatives très faibles, de l'ordre de 1 %, la taille de la surface à caractériser doit être pluricentimétrique, ce qui questionne la faisabilité de telles acquisitions avec les moyens technologiques actuels et la finalité des résultats obtenus, caractérisant des volumes élémentaires non pas à une échelle donnée mais incluant plusieurs échelles à la fois.

2 Introduction

Les roches argileuses, certaines pouvant être riches en matière organique, sont des roches sédimentaires à dominante argileuse. Dans un contexte énergétique, leur faible perméabilité et leurs interactions physicochimiques avec les solutés leur permet de constituer un milieu de haute capacité de confinement de ressources naturelles (hydrocarbures), et de stockage de déchets en formation géologique (radioactifs, CO₂, eau). L'optimisation du rendement et de la sûreté de l'extraction de ressources, ainsi que de l'enfouissement des déchets nécessite une bonne connaissance de leur structure et leur comportement à court et long termes, et pour les différentes sollicitations thermiques, hydromécaniques et chimiques rencontrées pendant et après l'exploitation, telles que : l'augmentation de la température autour des colis de déchets, la désaturation et re-saturation en eau de la roche, l'excavation mécanique des galeries et des puits, la fracturation hydraulique, etc. Les roches argileuses sont généralement caractérisées comme des matériaux multi-échelles (Yven *et al.*, 2007 ; Garcia *et al.*, 2011 ; Gaboreau *et al.*, 2011 ; Shen *et al.*, 2012 ; Sone et Zoback, 2013 ; Keller *et al.*, 2013). Leur comportement thermo-hydromécanique (THM) à l'échelle macroscopique dépend du comportement et de la distribution spatiale de leurs composants aux petites échelles. Le phénomène de retrait des roches argileuses lors d'un séchage illustre bien ce comportement multi-échelle. Lors d'une diminution de l'humidité relative ou de l'élévation de la température, l'intensité des déformations macroscopiques des roches argileuses est en partie dépendante de la teneur en eau de la matrice argileuse ainsi que de l'anisotropie du milieu (Pham *et al.*, 2007 ; Hédan *et al.*, 2012, 2014, 2018 ; Fauchille *et al.*, 2016), celle-ci étant contrôlée par l'orientation plus ou moins marquée des particules argileuses et des inclusions rigides tels que les quartz et carbonates (Robinet *et al.*, 2012 ; Fauchille, 2015). La localisation des fissures de séchage est fonction des hétérogénéités multi-échelles et de la direction préférentielle des plans sédimentaires (Montès *et al.*, 2004 ;

Soe *et al.*, 2009 ; Hédan *et al.*, 2012 ; Wang, 2012 ; Fauchille *et al.*, 2014). Cependant, malgré ces études, les relations entre la microstructure et les mécanismes thermo-hydromécaniques (THM) sont complexes et multiples, et restent relativement mal comprises (Cosenza *et al.*, 2019 ; Fauchille *et al.*, 2019).

L'objectif principal de cet article est de présenter une méthode qui permet de caractériser statistiquement la microstructure de ce type de matériau pour définir des volumes élémentaires représentatifs, qui permettront de mieux justifier le choix des échantillonnages pour des essais THM en laboratoire. À long terme, l'évaluation de la variabilité de la microstructure et des propriétés THM associées sera un apport pour des approches de modélisation numérique.

La méthode permet de définir des surfaces et volumes élémentaires représentatifs et de déterminer la taille et le nombre d'échantillons en fonction de l'incertitude acceptée sur la mesure d'un paramètre choisi qui caractérise la microstructure, et à l'inverse de définir l'incertitude de mesure de ce paramètre caractérisant un échantillon dont la taille a été fixée par des contraintes expérimentales (taille de l'éprouvette, préparation, etc.). Cette méthode est présentée ici dans le cas de roches argileuses mais peut s'appliquer à d'autres matériaux dont la microstructure est l'objet d'étude, tels que les matériaux anthropiques, argileux ou non (exemple : matériaux cimentaires, matériaux à base d'argilite gonflante, céramiques).

3 Les roches argileuses

3.1 Les argilites

Selon les communautés scientifiques, les termes roche argileuse, argilite, schiste, roche carbonée, « shale » ou encore « mudstone » en anglais ont souvent des significations différentes. Les paragraphes suivants rappellent la définition d'argilite et de roche carbonée, termes qui seront utilisés dans la suite de ce manuscrit.

Les argilites sont des roches sédimentaires d'origine détritique terrigène, c'est-à-dire que leurs composants sont hérités principalement d'autres roches ou de sédiments préexistants, qui ont subi une altération chimique et/ou une érosion physique. Les argilites ont été formées par diagenèse à partir de l'enfouissement de sédiments argileux (Pettijohn, 1957), et n'ont pas ou peu subi de modifications générales importantes à l'état solide de leur composition minérale et de leur microstructure. Ces modifications sont contrôlées par l'évolution des pressions et températures au cours du temps, ainsi que par un apport d'éléments chimiques par des écoulements de fluide dans la roche. La diagenèse à basse température et basse pression constitue la limite inférieure du métamorphisme, ce qui a conduit à classer les argilites parmi les roches sédimentaires (Tab. 1).

Les argilites sont composées en grande partie de minéraux de taille moyenne inférieure à 3,9 μm (Tab. 1) (Wentworth, 1922). La définition des argilites fait donc avant tout référence à la granulométrie de ses composants. En général, par leur

Tableau 1. Localisation des argilites dans la classification des roches détritiques terrigènes (Wentworth, 1922 ; Pettijohn, 1957).
Table 1. Argillaceous rocks in the classification of siliciclastic sedimentary rocks (Wentworth, 1922 ; Pettijohn, 1957).

Diamètre (mm)	Classe granulométrique	Particule		Sédiment meuble		Roche sédimentaire
256	Rudites	Blocs		Amas de blocs		Conglomérats
10		Galets, cailloux		Cailloutis		
4		Graviers		Graves		Microconglomérats
2		Granules				
1	Arénites	Grains de sable	Très grossier	Sable		Grès
0.5			Grossier			
0.250			Moyen			
0.125			Fin			
0.0625			Très fin			
0.031	Lutites	Poussières		Grossier		Siltite
0.0156				Moyen		Pélite
0.0039				Fin		
< 0.0039		Particules ultra fines		Argile		Argilite

taille ces minéraux sont souvent des phyllosilicates, qui caractérisent les minéraux argileux (par exemple : kaolinite, illite, smectite, interstratifiés), mais peuvent être aussi des carbonates (calcite) de taille micrométrique ou sub-micrométrique (Sammartino *et al.*, 2003). Cependant, il n'y a pas de seuil clair utilisé pour définir la proportion de minéraux argileux nécessaire pour considérer la roche comme une argilite.

Les minéraux argileux présents dans les argilites proviennent principalement d'un dépôt sédimentaire. Après sédimentation et diagenèse, les argiles de dépôt des argilites sont le plus souvent orientées et participent à la formation de plans d'anisotropie au sein du matériau. Le dépôt et l'accumulation de minéraux argileux caractérisent généralement les milieux hydrodynamiques calmes. En plus des minéraux argileux, les argilites contiennent également des carbonates, quartz, feldspaths, minéraux lourds (pyrite par exemple), en proportions variables (Gaucher *et al.*, 2004 ; Lerouge *et al.*, 2018) pouvant également être orientés.

De très faible conductivité hydraulique (typiquement $< 10^{-12} \text{ m.s}^{-1}$), les argilites sont des niveaux géologiques aquicludes. Elles se présentent sous forme de roches « couverture » sur la partie sus-jacente de couches aquifères plus poreuses et plus perméables, par exemple, dans le cas de réservoirs naturels ou anthropiques d'hydrocarbures (pétrole, gaz), de CO₂ ou d'eau (réservoir souterrain de gaz en formation aquifère, par exemple). En France et en Europe, différentes formations géologiques sont étudiées dans le contexte du stockage de déchets radioactifs : les argilites du

Callovo-Oxfordien, appelée aussi argilites de Bure (Meuse/Haute-Marne, France) (Gasc-Barbier *et al.*, 2004 ; Robinet *et al.*, 2012 ; Wang *et al.*, 2015 ; Desbois *et al.*, 2017 ; Stavropoulou *et al.*, 2018), les argilites de Tournemire du Toarcien (Aveyron, France) (Bonin, 1998 ; Cabrera *et al.*, 2001 ; Hédan *et al.*, 2012, 2014 ; Tsang *et al.*, 2012 ; Cosenza *et al.*, 2016 ; Fauchille *et al.*, 2016 ; Bonnelye *et al.*, 2017a, 2017b), les argilites à Opalines de Mont Terri en Suisse (Thury, 2002 ; Nussbaum *et al.*, 2011 ; Bossart *et al.*, 2002, 2018), etc. D'autres formations, non définies comme des argilites comme l'argile de Boom (Belgique), sont aussi étudiées dans ce contexte.

Le terme argilite ne doit pas être confondu avec les termes « schiste » ou « shale ». Les schistes sont des roches métamorphiques, ce qui n'est pas le cas des argilites. Lorsque les contraintes de pression et température et la circulation de fluides sont suffisantes, les argilites peuvent devenir des schistes et passent donc de la catégorie des roches sédimentaires aux roches métamorphiques. Le « shale » est généralement la dénomination commerciale d'une roche contenant plus de 1,5–2% en masse de matière organique pour une exploitation de ressources hydrocarbonées (Jarvie, 2012), que la proportion d'argiles soit importante ou non. Un « shale » n'est pas toujours une roche argileuse mais peut être aussi à dominante quartzreuse ou carbonatée (Milner *et al.*, 2010 ; Hammes *et al.*, 2011 ; Chalmers *et al.*, 2012). La notion de shale est donc beaucoup plus générale que la notion d'argilite et ne dépend ni de la granulométrie, ni de la minéralogie, même si de manière générale les shales ont une

granulométrie fine. À notre connaissance, il n'existe pas de traduction du mot « shale » en français. Le mot « mudstone » correspond en revanche à la traduction littérale d'argilite en français.

Les argilites présentent une variabilité naturelle induisant des variabilités de comportement. De l'échelle de la formation à l'échelle microscopique, différents types d'hétérogénéités sont présents et influencent leur comportement THM : des nodules calcaires de taille centimétrique à décimétrique organisés en bancs (Okay *et al.*, 2013) ; des concrétions carbonatées de taille centimétrique influençant par exemple la localisation de fissures de dessiccation (Hédan *et al.*, 2012) ; un litage sédimentaire (Bennett *et al.*, 1991 ; Charpentier *et al.*, 2001) à l'échelle millimétrique et dont certains niveaux sont plus ou moins cimentés, induisant des vitesses des ondes P supérieures perpendiculairement aux plans de stratification (David *et al.*, 2007 ; Ghorbani *et al.*, 2009) et une meilleure résistance en compression uniaxiale dans le sens du dépôt par exemple ; des morphologies et tailles variables des inclusions rigides micrométriques (Robinet *et al.*, 2012 ; Fauchille, 2015) ; des minéraux argileux orientés selon les plans de stratification et autour des inclusions rigides (Noiret, 2009) ; des fractions de matrice argileuse variables à l'échelle micrométrique, etc.

3.2 Les roches carbonées argileuses

Les roches carbonées sont des roches sédimentaires résultant de l'accumulation et de la décomposition de matière organique issus d'êtres vivants. Contrairement aux roches argileuses détritiques terrigènes pour lesquelles les composants sont principalement d'origine minérale, les composants des roches carbonées sont en partie d'origine organique. Cependant, certaines roches carbonées comportent des minéraux argileux en proportions importantes, du quartz et des carbonates, ces éléments pouvant être majoritaires par rapport à la matière organique, on parle alors de roches argilo-carbonées (exemples : roches argilo-carbonées de Bowland et Kimmeridge au Royaume-Uni ; Haynesville, Woodford, Marcellus, aux États-Unis) (Milner *et al.*, 2010 ; Hammes *et al.*, 2011 ; Chalmers *et al.*, 2012). Les roches argilo-carbonées représentent donc une partie des roches carbonées.

3.3 Facteurs microstructuraux influençant le comportement THM des roches argileuses

Le comportement THM macroscopique des roches argileuses est contrôlé par leur microstructure, faisant intervenir différentes échelles et types d'hétérogénéités. Cependant, bien que reconnues, les relations entre la microstructure et la déformation THM ne sont pas encore clairement expliquées, malgré un certain nombre de facteurs identifiés à différentes échelles : la réponse des roches argileuses à des sollicitations hydriques, thermiques ou mécaniques est en partie fonction de l'état hydrique des échantillons, de la minéralogie moyenne, de l'arrangement des hétérogénéités minéralogiques, de l'anisotropie liée à l'orientation des minéraux argileux et des inclusions rigides (quartz, carbonates, micas, feldspaths, pyrites), de l'histoire géologique et mécanique du matériau, de l'échelle d'observation et de la

taille des échantillons (Bauer-Plaindoux *et al.*, 1998 ; Pham *et al.*, 2007 ; Yang *et al.*, 2012 ; Wang *et al.*, 2013 ; Fauchille *et al.*, 2014, 2016 ; Bonnelye *et al.*, 2017a, 2017b ; Hédan *et al.*, 2018). *A priori* différents, ces facteurs sont tous liés à la microstructure du matériau et à la répartition spatiale des hétérogénéités (lentilles argileuses, agrégats carbonatés ou quartz cimentés, variabilité spatiale de la porosité, lamines sédimentaires, fissure préexistantes, etc.) à une échelle millimétrique à infra-millimétrique. Des hétérogénéités de diverses tailles étant présentes dans ces argilites, il est ainsi nécessaire de caractériser de façon quantitative leurs microstructures pour discuter ensuite de la notion de volume élémentaire représentatif.

4 Caractérisation quantitative de la microstructure

Les méthodes d'imagerie (microscopie optique, microscopie électronique à balayage, environnementale ou à double faisceaux, à transmission, à force atomique ; tomographies neutronique ou à rayons X, etc.) sont communément utilisées pour caractériser la microstructure 2D et 3D de nombreux géomatériaux. Ces méthodes permettent d'apporter des informations locales sur des surfaces ou volumes plus ou moins larges en fonction de la technologie utilisée, et à différentes résolutions spatiales. Elles sont en général utilisées en complément d'autres techniques qui permettent d'acquérir des données moyennes sur les échantillons comme la porosimétrie au mercure afin de mesurer la porosité connectée, ou la diffraction aux rayons X permettant de déterminer des fractions semi-quantitatives des phases minéralogiques présentes dans les échantillons.

4.1 Méthode générale

En fonction de la méthode d'imagerie choisie, les échantillons (carottes de forage par exemple, extraites dans une direction donnée) de roche argileuse sont découpés (à la scie ou au laser par exemple) pour obtenir la taille voulue, et polis pour avoir un état de surface de qualité suffisante pour la segmentation des phases minéralogiques sur les images acquises (Fig. 1). La préservation des échantillons avant préparation est une étape critique, qui doit être menée avec beaucoup d'attention afin de prévenir toute modification importante de la microstructure. Les perturbations hydriques et mécaniques sont à éviter autant que possible.

La méthode est divisée en plusieurs étapes (Fig. 1) :

- l'acquisition de l'image ;
- le post traitement de l'image comprenant le filtrage et la segmentation des phases minéralogiques ;
- le partitionnement de l'image en domaines de taille égale ;
- les calculs statistiques réalisés sur un ensemble de valeurs d'une propriété p choisie qui caractérise la microstructure de chaque domaine (exemple : porosité, fraction argileuse).

La méthode est présentée ici dans un cas général et ces étapes ne dépendent ni de la technique, ni de la propriété choisie pour caractériser la microstructure. En revanche, la préparation de l'échantillon dépend de la technique utilisée pour l'acquisition de l'image. Le cas d'une image 2D est

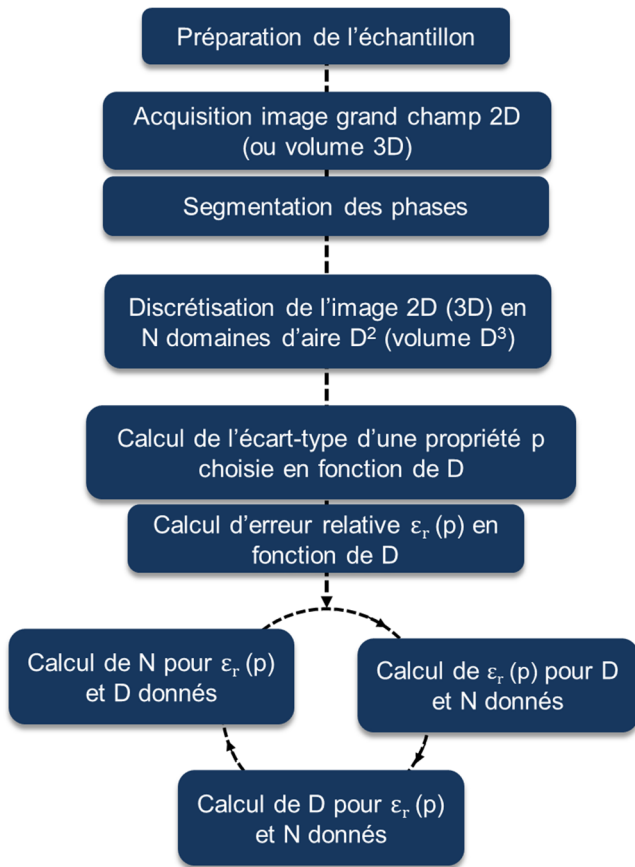


Fig. 1. Méthode de caractérisation quantitative basée sur la discrétisation d'une image 2D ou 3D de la microstructure d'une roche argileuse. ($\varepsilon_r(p)$) : erreur relative sur la propriété p ; N : nombre de sous-échantillons représentant les partitions de l'échantillon initial; $D \times D$: aire du domaine dans lequel p est mesurée.

Fig. 1. Statistical method based on the partition of a 2D or 3D image of clayrock's microstructure. ($\varepsilon_r(p)$): relative error of the p parameter; N : number of sub-samples which represent the partitions of the initial sample; $D \times D$: area of the domain in which p is measured).

présenté en utilisant la microscopie électronique à balayage et le cas d'une image 3D en tomographie à rayons X, mais d'autres méthodes peuvent être utilisées à condition que l'image soit suffisamment grande pour permettre sa partition en plusieurs domaines indépendants.

4.2 Acquisition d'image

4.2.1 Cas 2D: acquisition d'une image grand champ en microscopie électronique à balayage

4.2.1.1 Préparation de l'échantillon

La surface de l'échantillon doit être finement polie au préalable pour permettre une segmentation optimisée des différentes phases minéralogiques présentes sur des images de microscopie électronique à balayage avec imagerie en électrons rétrodiffusés. Un polissage par granulométrie décroissante, sur disque de silice ou à l'aide de produits diamantés, ou un polissage ionique sont recommandés (Dvorkin, 2009; Desbois *et al.*, 2011; Fauchille, 2015). Pour

optimiser l'état de surface de l'échantillon et éviter son éclatement lors du polissage, celui-ci peut être également imprégné dans une résine polymérisée (Sardini *et al.*, 2009; Prêt *et al.*, 2010; Robinet *et al.*, 2012).

4.2.1.2 Acquisition d'une image grand champ

L'imagerie en microscopie électronique à balayage (MEB) permet d'obtenir des images de la surface de matériaux naturels ou anthropiques à des échelles du cm au nm. La surface observée est balayée par un faisceau d'électrons incidents qui pénètre dans un volume de l'échantillon appelé volume d'intégration, dont la taille dépend de l'énergie cinétique des électrons, la tension d'accélération, et du numéro atomique moyen des éléments présents dans l'échantillon. Les électrons incidents interagissent avec l'échantillon pour aboutir à la réémission simultanée d'électrons secondaires et rétrodiffusés dont la quantité est convertie en niveaux de gris pour former une image de la surface. Les niveaux de gris des images sont fonction de la minéralogie locale et de la porosité. L'acquisition d'images dans un microscope électronique à balayage conventionnel est généralement effectuée sous vide (par exemple 10^{-6} mbar) et requiert un échantillon à l'état sec pour tous les modes d'acquisition, ou sous vide partiel mais pour des modes d'observation sélectionnés (rétrodiffusés). En revanche, l'acquisition peut être effectuée dans un microscope électronique à balayage environnemental pour des échantillons humides mais il faut veiller à ce que l'échantillon n'évolue pas (gonflement, retrait, fissuration...) pendant l'observation.

L'acquisition d'une image grand champ consiste à acquérir un nombre déterminé d'images réparties en n lignes et m colonnes avec 15 à 20 % de surface en commun d'une image à l'autre pour permettre un recollage optimisé (Fauchille, 2015; Cosenza *et al.*, 2019). Les bords communs des images sont ensuite recollés par suivi de marqueurs, manuellement ou automatiquement selon les modèles de microscope (Figuerola Pilz *et al.*, 2017; Buckman *et al.*, 2018). L'image finale sur laquelle figurent toutes les images acquises doit être suffisamment grande pour permettre son partitionnement en au moins 10 domaines pour les calculs statistiques. La granulométrie fine des roches argileuses impose une acquisition d'image à une résolution inférieure au $\mu\text{m}\cdot\text{pixel}^{-1}$.

4.2.2 Cas 3D: acquisition par tomographie à rayons X

La tomographie à rayons X est une méthode non destructive très répandue en géosciences et de manière plus générale en sciences des matériaux, permettant la reconstruction d'images 3D d'un objet (Ketcham et Carlson, 2001; Cnudde et Boone, 2013; Keller *et al.*, 2013; Ma *et al.*, 2017). L'absorption d'un faisceau de rayons X transmis dans une épaisseur de l'échantillon est collectée grâce un détecteur suivant des orientations multiples (de l'échantillon ou du détecteur). Les images numériques 3D reconstruites sont composées de niveaux de gris, chaque voxel correspondant au coefficient d'atténuation local du faisceau incident. Les niveaux de gris du volume reconstruit caractérisent les différences de densité et de composition au cœur de l'échantillon imagé. Les caméras communément utilisées en tomographie à rayons X permettent d'obtenir des résolutions de quelques μm pour des échantillons de diamètre de quelques

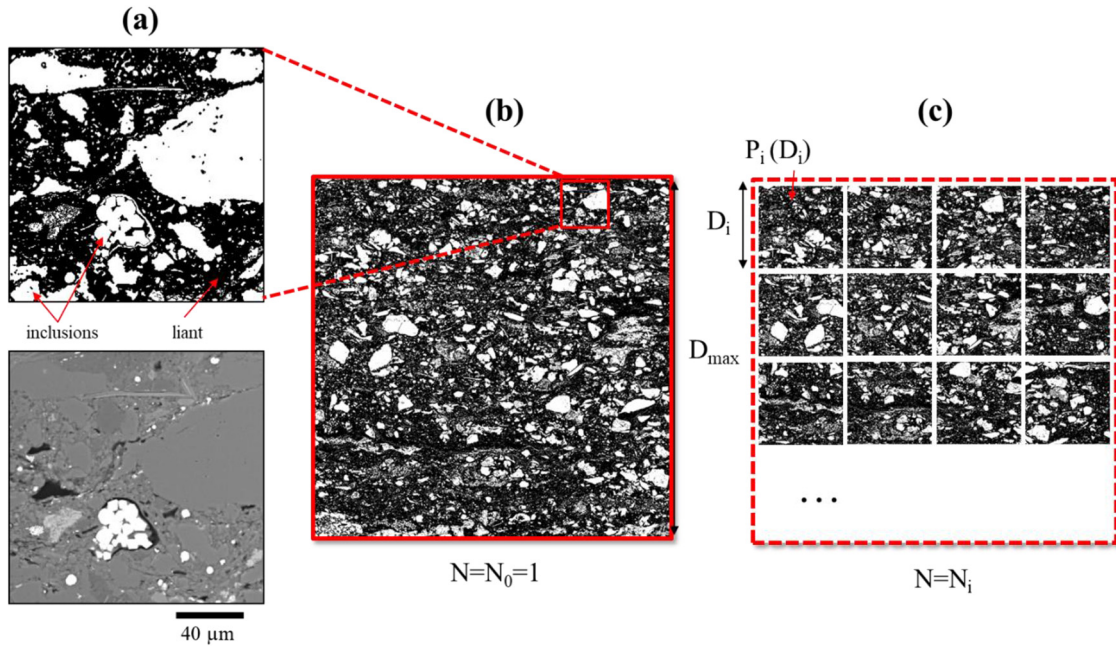


Fig. 2. (a) Segmentation des phases et du liant (matrice); (b) partitionnement d’une image grand champ segmentée d’une roche argileuse de surface $D_{max} \times D_{max}$ en (c) N_i domaines de surface $D_i \times D_i$. Les domaines sont caractérisés par une propriété p , qui est ici la fraction d’aire de la matrice argileuse représentée en noir.

Fig. 2. (a) Mineral segmentation; (b) division of a 2D image of clayrock’ microstructure characterized by a $D_{max} \times D_{max}$ area; (c) N_i domains of $D_i \times D_i$ areas. The domains are characterized by the clay fraction p (black).

millimètres. La méthode ne nécessite pas de préparation d’échantillon particulière.

4.3 Segmentation des phases minéralogiques

Les différentes phases à analyser sur les images (par exemple : matrice argileuse, quartz, carbonates...) sont d’abord seuillées, c’est-à-dire que les intervalles de niveaux de gris correspondant à chaque phase sont sélectionnés. Elles sont ensuite segmentées, c’est-à-dire que les phases sont partitionnées en éléments indépendants, ici les inclusions rigides (grains), au sein d’une matrice (Fig. 2a). Les images segmentées sont binarisées : le niveau de gris des inclusions rigides est fixé à 255 (blanc sur une image en 8 bit) et la matrice à 0 (noir sur une image en 8 bit). Dans le cas de phases minéralogiques dont le niveau de gris est proche du fond (matrice ou liant), des filtres de variance locale (Prêt *et al.*, 2010; Robinet *et al.*, 2012; Fauchille *et al.*, 2018), de débruitage par morceaux (Ma *et al.*, 2016) ou de lignes de partage de type « watershed » (Robinet *et al.*, 2012) peuvent être utilisés pour séparer les zones hétérogènes des zones homogènes, afin de réduire le bruit et de détecter les contours des phases minéralogiques.

4.4 Partitionnement de l’échantillon en sous-échantillons

La méthode consiste à partitionner l’image de l’échantillon (grand champ en 2D ou volume 3D) en un nombre limité de sous-images indépendantes, appelées domaines (Kanit *et al.*, 2003). Ces domaines sont des sous-échantillons de l’échantillon initial

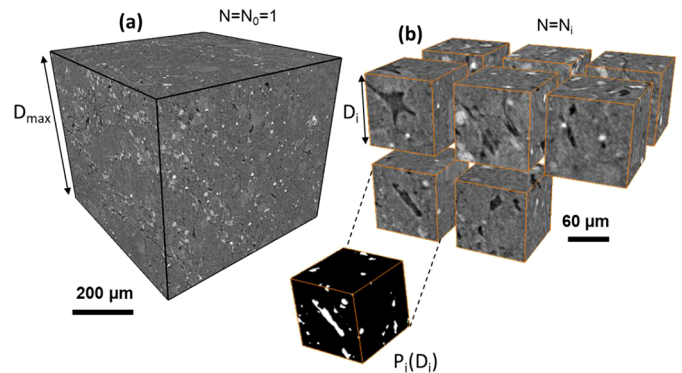


Fig. 3. (a) Volume 3D de roche argileuse, (b) discrétisation du volume (a) en domaines de dimension D^3 . La matrice (noir) et les inclusions rigides (blanc) sont segmentées sur chaque domaine.

Fig. 3. (a) 3D volume of clay rock, (b) example of domains extracted from the volume in (a). The clay matrix (black) and rigid inclusions (white) are segmented on each domain.

(qui doit être de taille suffisamment grande), pouvant également être considérés comme des réalisations indépendantes de la microstructure du matériau analysé. La méthode est détaillée pour des domaines carrés dans un cas 2D (Fig. 2), le principe est identique en 3D (Fig. 3). Chaque domaine est caractérisé par une propriété p choisie, qui peut être par exemple la fraction d’aire, la surface moyenne ou l’orientation moyenne d’une phase. La fraction d’aire (de volume) de la matrice (représentée en noir sur les figures 2 et 3) a été choisie pour expliquer la méthode. La fraction d’aire est comprise entre 0 et 1 et correspond à la surface occupée par une phase en pixels dans un domaine donné, divisée

par la surface du domaine. Elle correspond donc à la proportion surfacique d'une phase dans un domaine.

L'image initiale est composée d'un seul domaine ($N = N_0 = 1$) d'aire $D_{\max} \times D_{\max}$ et caractérisée par une fraction d'aire de matrice argileuse p_0 (Fig. 2b et Fig. 3a). L'image initiale est ensuite partitionnée en N_i domaines ($N_i > N_0$) de côté $D_i < D_{\max}$ (Fig. 2c et Fig. 3b). Cet ensemble de domaines de surface $D_i \times D_i$ est caractérisé par un ensemble de fractions d'aires p_i . L'écart-type σ_p de chaque série de p_i est calculé et comparé à D_i . En déterminant la relation mathématique liant σ_p à D_i , un écart-type seuil (exemples : 0,05 ; 0,1 ; 0,15) peut ainsi être choisi et le D correspondant est déterminé. La taille de l'image initiale étant fixe, plus D est grand, plus le nombre de domaines N est faible. En général, des domaines de côté supérieur à 10 pixels (ou voxels) ou un nombre $N > 10$ sont considérés pour éviter la binarisation de la microstructure (c'est-à-dire que les domaines contiennent 0% ou 100% de matrice argileuse) ou des biais statistiques sur la forme des inclusions, liés à des données non significatives.

Lorsque le partitionnement est réalisé pour des domaines côte à côte, les domaines sont indépendants, mais cela n'exclut pas la présence d'un même grain dans deux domaines voisins, si celui-ci présente une forme allongée par exemple. La méthode est présentée ici pour des domaines carrés.

4.5 Variabilité de la microstructure

Pour quantifier la variabilité de la microstructure de l'échantillon, l'incertitude sur la mesure de la propriété p est calculée par l'écart-type de p sur l'image en fonction de D . La fraction de matrice argileuse $p_i(D)$ est calculée dans N domaines. L'écart-type de $p(D)$, $\sigma_p(D)$, s'écrit donc (eq. (1)) :

$$\sigma_p(D) = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^N (p_i(D) - \bar{p})^2}{N}}, \quad (1)$$

\bar{p} représente la fraction d'aire ou de volume (3D) moyenne de matrice argileuse sur l'image initiale ($N=1$) et i le numéro du domaine (si l'image est divisée en 10 domaines, alors i varie de 1 à 10) (2D).

L'erreur relative ε_r sur la mesure de p sur l'image partitionnée en domaines de surface $D \times D$ (ou de volume D^3) est ensuite calculée (eq. (2)) (Kanit *et al.*, 2003) :

$$\varepsilon_r(p) = \frac{2\sigma_p(D)}{\sqrt{N\bar{p}}}. \quad (2)$$

Le calcul de l'écart-type de p étant réalisé sur des domaines composant toute l'image initiale de l'échantillon, il permet d'estimer la représentativité de la mesure de p sur la section étudiée (ou le volume) pour une valeur d'écart-type choisie.

L'image initiale est partitionnée en N domaines plusieurs fois afin d'obtenir la relation expérimentale $\sigma_p = f(D)$. À partir de cette relation, les erreurs relatives sont calculées en fonction de D et de N . D'après Kanit *et al.* (2003), la surface élémentaire de microstructure représentative de la propriété p correspond à la surface d'un domaine de surface $D \times D$ (ou de volume D^3) nécessaire ($N=1$) pour que la propriété moyenne \bar{p} soit calculée avec une erreur relative fixée, en supposant que \bar{p} et la

fonction $\sigma_p(D)$ soient connues. D'après l'équation (2), la surface représentative de p est déterminée directement sur la courbe $\varepsilon_r(p)$ en fonction de D ou par interpolation, en fixant N à 1. Cette opération revient à déterminer la taille d'un seul échantillon nécessaire pour garantir $\bar{p} \pm (\bar{p} \times \varepsilon_r)$. Si la surface représentative (ou le volume) de p est significativement trop grande pour être analysée expérimentalement (par exemple 20 cm en microscopie électronique à balayage), N peut être choisi supérieur à 1, c'est-à-dire que de plus petits échantillons doivent être considérés pour conserver $\bar{p} \pm (\bar{p} \times \varepsilon_r)$.

5 Exemple type sur la microstructure d'une lamine argilo-carbonée de Bowland

5.1 Matériau

Un échantillon de roche argilo-carbonée de Bowland a été utilisé dans cette étude. Il provient du forage Preese Hall-1, creusé en 2010 dans le bassin carbonifère de Bowland situé dans le Lancashire au nord-ouest de l'Angleterre. La minéralogie et la microstructure de la roche sédimentaire de Bowland sont très variables. La roche argilo-carbonée de Bowland est caractérisée par des niveaux d'argilite plus ou moins riches en matière organique selon les profondeurs, en alternance avec des pélites et siltites riches en quartz, carbonates et feldspaths (Andrews, 2013 ; Ma *et al.*, 2016 ; Fauchille *et al.*, 2017, 2018 ; Newport *et al.*, 2018). L'échantillon provient d'une lamine argilo-quartzitique à une profondeur de 2495,27 m et a été fourni par le British Geological Survey à Nottingham (Angleterre). Sa composition moyenne est de 51,7% en masse de quartz, 18,4% d'argiles (kaolinite), 11,1% ankérite, 8,6% albite, 5,1% muscovite, 3,5% calcite et 1,6% pyrite (Fauchille *et al.*, 2017, 2018). La microstructure de l'échantillon utilisé ici en exemple est caractérisée par une matrice contenant des particules argileuses et organiques orientées dans la direction des plans sédimentaires, des grains de quartz en partie cimentés, et des inclusions rigides non cimentés de quartz, carbonates, feldspaths, muscovite, pyrites et matière organique (Fig. 4). Les particules de matière organique, une partie des quartz et les micas sont orientés perpendiculairement à la direction de sédimentation.

5.2 Méthode d'étude

Une mosaïque d'images 2D a été réalisée à l'aide d'un MEB JEOL JSM 6610LV à une tension de 20 kV et une distance de travail de 10 mm. L'image grand-champ est composée de 11 lignes de 4 images de 1280×960 pixels acquises avec imagerie en électrons rétrodiffusés à un grossissement de 250 et une résolution de $0,4 \mu\text{m} \cdot \text{pixel}^{-1}$. Les images se superposent de 23% pour faciliter leur correspondance. Les 44 images de la mosaïque couvrent un champ de 4204×8128 pixels, soit $1,68 \times 3,25 \text{ mm}^2$ (Fauchille *et al.*, 2018). La lamine analysée correspond à 22 images de la mosaïque complète. Les images ont été segmentées par séparation des niveaux de gris et filtre variance à l'aide des logiciels Visual Studio, Matlab et ImageJ. L'exemple type est développé à l'échelle mésoscopique, c'est-à-dire que la structure de la roche est composée à cette échelle d'une matrice homogène dans laquelle sont réparties des grains

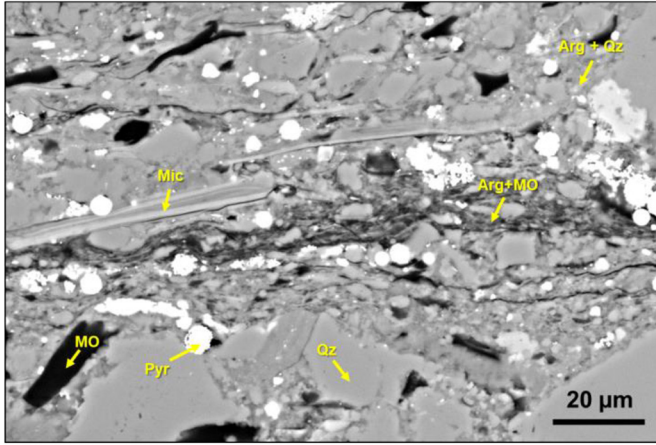


Fig. 4. Microstructure type d'une lamine argilo-carbonée de Bowland dans le forage Preese Hall 1 à une profondeur de 2495,27 m (Lancashire, Royaume-Uni). MO: matière organique; pyr: pyrite; qz: quartz; arg+MO: argiles et matière organique intercalées; Arg+Qz: argiles et quartz mélangés.

Fig. 4. Microstructure of the laminated Bowland Shale in Preese Hall 1 borehole at the depth of 2495.27 m. MO: organic matter particles; pyr: pyrite; qz: quartz; arg+MO: clays interbedded with organics; Arg+Qz: clays mixed with quartz.

hétérogènes (répartition spatiale, composition minéralogique, forme, orientation, etc.). Les éléments suivants ont été identifiés: la matrice argilo-quartzitique, les grains de quartz, carbonates, micas et minéraux lourds ainsi que la matière organique et les fractures. Des domaines de calculs carrés et indépendants de 10 à 1876 pixels, correspondant à $4 \times 4 \mu\text{m}^2$ jusqu'à $750 \times 750 \mu\text{m}^2$, ont été considérés. À la résolution de l'étude, les inclusions rigides de surface inférieure à $4 \mu\text{m}$ (10 pixels) ne sont pas prises en compte.

5.3 Résultats et discussion

5.3.1 Incertitude sur la mesure de la fraction argileuse sur la surface d'observation

Chaque domaine de surface $D \times D$ correspond à un sous-échantillon de la surface initiale de l'échantillon. Leur nombre N suit une loi puissance en fonction de D (Fig. 5a). Le nombre de domaines indépendants est compris entre 10 et 100 000 sur l'image analysée, et a été considéré significatif pour effectuer des calculs d'incertitude de p sur l'image.

La dispersion des valeurs de la fraction argileuse (Fig. 5b) dans l'intervalle $[\bar{p} - 2\sigma_p; \bar{p} + 2\sigma_p]$ diminue avec l'augmentation de la taille des domaines, montrant que d'un domaine à l'autre la fraction argileuse varie de moins en moins autour de la moyenne \bar{p} avec l'élargissement des zones d'observation. Notons ici que la fraction argileuse moyenne calculée sur l'image initiale est de 0,67, et est bien supérieure à celle déterminée par diffraction aux rayons X. L'étude étant réalisée à l'échelle mésoscopique, les inclusions rigides de résolution inférieure à $4 \mu\text{m}$ (10 pixels correspondant à la taille d'inclusion minimale prise en compte, multipliés par la résolution de l'étude de $0,4 \mu\text{m} \cdot \text{pixel}^{-1}$) ne sont pas détectées et provoquent la surestimation de la fraction argileuse.

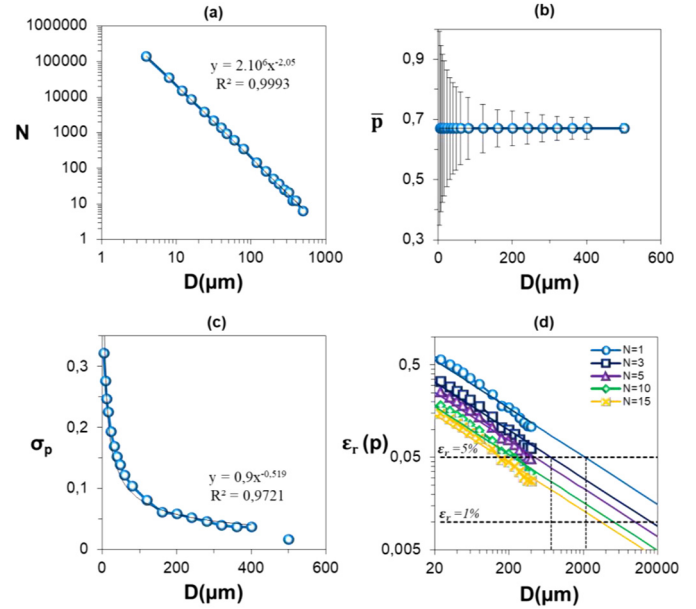


Fig. 5. (a) Nombre de domaines N en fonction de la taille des domaines; (b) intervalles de confiance de la fraction argileuse moyenne sur l'image en fonction de la taille des domaines; (c) écart-type de la fraction argileuse en fonction de la taille des domaines; (d) erreur relative de la fraction argileuse en fonction de la taille des domaines de calcul.

Fig. 5. (a) Number of domains N as a function of their surface; (b) intervals of confidence of clay fraction as a function of domain's surface; (c) standard deviation of clay fraction as a function of domain's surface; (d) relative error of clay fraction as a function of domain's size.

L'écart-type de la fraction argileuse σ_p diminue avec l'augmentation de D en suivant une loi puissance de type $\sigma_p(D) = aD^{-b}$ avec a et b coefficients supérieurs à 0 (Fig. 5c) ($a=0,9$; $b=0,519$), ce qui montre une très grande variabilité de microstructure pour des domaines réduits et une homogénéisation pour des domaines suffisamment larges. Cette loi est valable pour des domaines dont le nombre est supérieur à 10 et comprenant assez d'inclusions rigides et de matrice argileuse. En effet, des domaines trop petits ont tendance à binariser la microstructure et affectent les calculs de p ($p=0$ ou 1 dans un domaine composé à 0% ou 100% de matrice argileuse, respectivement).

En connaissant la relation mathématique $\sigma_p = f(D)$, l'erreur relative de p est calculée (eq. (3)) (Kanit *et al.*, 2003) avec a et b déterminés expérimentalement pour D compris entre 4 et $400 \mu\text{m}$ (Fig. 5c):

$$\varepsilon_r(p(D)) = \frac{2aD^{-b}}{\sqrt{N}\bar{p}}, \quad (3)$$

$$D = \left(\frac{2a}{\varepsilon_r(p(D))\bar{p}} \sqrt{N} \right)^{\frac{1}{b}}. \quad (4)$$

L'erreur relative de p a été calculée à partir de l'équation (3) en fixant N entre 1 et 15 (Fig. 5d). Par extrapolation des lois puissances de ε_r en fonction de D , on peut déduire que

pour atteindre une erreur relative de 5 % sur p en considérant un seul échantillon c'est-à-dire que $N=1$ (Fig. 5d), l'expérimentateur doit travailler avec des domaines carrés de surface supérieure ou égale à $2,15 \times 2,15 \text{ mm}^2$, en considérant la résolution de l'étude de $0,4 \mu\text{m}\cdot\text{pixel}^{-1}$. Si l'expérimentateur souhaite travailler en considérant une erreur relative de 1 % sur p , il devra travailler sur des domaines bien supérieurs à 2 cm de côté. Si la surface d'observation est limitée due à des contraintes expérimentales, l'expérimentateur peut augmenter le nombre d'échantillons observés (N plus grand). Par exemple, pour une erreur relative de 5 % sur la fraction argileuse, l'intersection des courbes noires en pointillés avec celles des erreurs relatives sur la figure 5d montre que l'expérimentateur peut caractériser la microstructure de la lamine de Bowland sur 3 échantillons de $700 \times 700 \mu\text{m}$, sur 5 échantillons de $450 \times 450 \mu\text{m}$, sur 10 échantillons de $220 \mu\text{m}$, ou sur 15 échantillons de $130 \times 130 \mu\text{m}$, pour une erreur relative constante sur la mesure de p . Ainsi, d'après cette méthode, lorsque l'expérimentateur souhaite travailler à une erreur relative donnée sur p , il peut utiliser peu d'échantillons de grande taille ou plus d'échantillons de plus petite taille.

5.3.2 Surface élémentaire représentative de la microstructure observée

À l'échelle de l'étude, la surface élémentaire représentative de p pour une erreur relative donnée est la valeur de D pour $N=1$ (Fig. 5d). D'après les équations (3) et (4), la fraction argileuse de la lamine argilo-quartzitique de Bowland est considérée comme représentative de la fraction moyenne de l'image grand champ dans un domaine supérieur ou égal à $4,8 \times 4,8 \text{ cm}^2$ pour une erreur relative de 1 % de p , $2,15 \times 2,15 \text{ mm}^2$ pour une erreur relative de 5 %, et $567 \times 567 \mu\text{m}^2$ pour une erreur relative de 10 %. La valeur de la surface élémentaire est toujours associée à une valeur d'erreur, une échelle et une résolution d'observation.

5.3.3 Nombre d'échantillons à considérer pour une surface d'étude donnée

Le nombre N de domaines à considérer pour des surfaces et erreurs relatives données a été calculé à partir de l'équation (5) (Fig. 6) :

$$N = \frac{4(aD^{-b})^2}{\varepsilon_r(p(D))^2 p^2}. \quad (5)$$

Pour des erreurs relatives entre 1 et 15 %, généralement admises expérimentalement, N montre une relation puissance en fonction de D , due à la fonction puissance de $\sigma_p = f(D)$ caractérisée précédemment (Fig. 5c). Pour une surface analysée de $100 \times 100 \mu\text{m}^2$ et en imposant une erreur relative sur p de 1 %, l'expérimentateur devra travailler avec 602 échantillons. Pour des erreurs relatives de 5 et 15 % sur la mesure de p , l'expérimentateur devra travailler avec 24 et 6 échantillons, respectivement.

6 Apports et limites de la méthode

La méthode exposée ici de manière générale puis par un exemple type à l'échelle mésoscopique sur un échantillon de

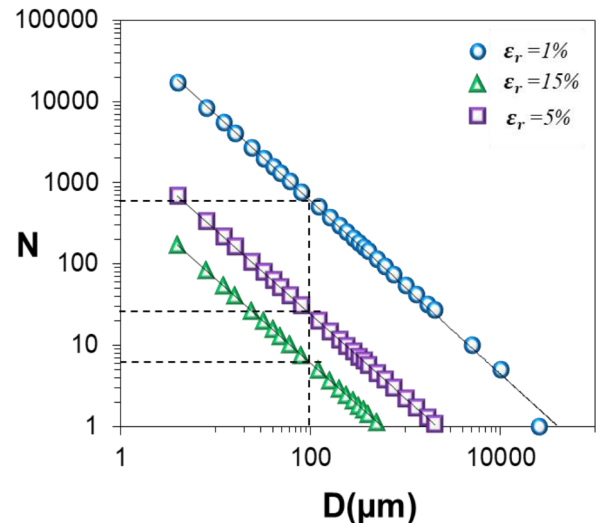


Fig. 6. Nombre N de domaines en fonction de D pour des erreurs relatives de p de 1,5 et 15 %.

Fig. 6. Number N of domains as a function of D for relative errors of p from 1.5 to 15 %.

Bowland, est une méthode forte car elle permet de quantifier le nombre et la taille des échantillons nécessaires pour caractériser une propriété p contenue dans un intervalle de confiance, ce qui permet une optimisation du nombre d'analyses microstructurales à réaliser (et donc du coût) pour caractériser un matériau. La méthode présente l'avantage important de considérer des domaines indépendants, qui permettent d'extrapoler des valeurs de surfaces élémentaires, dont la taille ne permet pas forcément d'être contenue dans l'échantillon initial lorsque l'erreur relative de p est faible.

Sur un matériau présentant une variabilité naturelle et multi-échelle, un choix optimisé du nombre et/ou de la taille minimale des échantillons permet théoriquement de diminuer et/ou moyenner la variabilité des réponses de ce type de matériau lors d'essais thermo-hydrromécaniques pour mieux les interpréter.

Les surfaces élémentaires représentatives calculées dans l'exemple type montrent des ordres de grandeurs de plusieurs centimètres (soit environ la taille d'une lame mince standard) pour que la fraction argileuse soit représentative de la fraction moyenne à $\pm 1\%$ à l'échelle mésoscopique. Pour des erreurs relatives de p inférieures à 1 %, des surfaces pluricentimétriques sont difficilement observables et analysables en microscopie électronique en haute résolution. À titre d'exemple, une surface caractérisée en microscopie électronique à balayage de $4,8 \text{ cm} \times 4,8 \text{ cm}$ avec une résolution de $0,4 \mu\text{m}\cdot\text{pixel}^{-1}$ serait composée de 117×117 images carrées de 1280×1280 pixels, soit 13 689 images en tenant compte d'un taux de recouvrement de 20 %. En tenant compte de la stabilité du faisceau d'électrons, des réglages de l'appareil, du temps d'acquisition et de la planéité de l'état de surface, le nombre d'images acquises atteint à notre connaissance est généralement de plusieurs centaines à un millier d'images (Desbois *et al.*, 2011 ; Lemmens et Richards, 2013 ; Klaver *et al.*, 2015). Pour une application pratique de cette méthode, l'observation de surfaces plus petites et un nombre d'échantillons plus élevés sont ainsi préconisés, plutôt qu'un seul échantillon de grande taille, puisque l'erreur relative sur la propriété étudiée reste la même.

De manière générale, la mesure ou la connaissance de la propriété moyenne étudiée est un point clé de la méthode. La fraction argileuse peut être caractérisée par diffraction aux rayons X, et la porosité par combinaison de plusieurs méthodes, comme la porosimétrie au mercure et l'adsorption de diazote par exemple (Gaboreau *et al.*, 2016). Pour comparer ce type de mesure à des données extraites d'images, une résolution d'image et une segmentation des phases extrêmement fines doivent être prises en compte. La fraction argileuse de l'image initiale a été considérée comme la fraction moyenne de l'échantillon dans cette analyse, mais cette valeur est dépendante de l'échelle d'étude, trop grossière dans notre cas pour détecter les petites inclusions rigides infra- μm . Il n'existe pas de séparation d'échelle claire entre la matrice et les inclusions car des inclusions de petite taille sont dispersées dans la matrice (Sammartino *et al.*, 2003). La définition de la matrice dépend de l'échelle étudiée (Robinet *et al.*, 2015), les résultats obtenus avec la méthode présentée sont ainsi valables à une échelle donnée uniquement. Néanmoins, même si les échelles microscopique, mésoscopique et l'échelle de la formation géologique peuvent être vues comme hétérogènes, l'échelle macroscopique est « relativement homogène », ce qui permet d'acquérir des données expérimentales caractérisant le comportement THM des roches argileuses pouvant être ensuite remontées à l'échelle de la formation géologique.

7 Conclusion

Les roches argileuses sont des roches sédimentaires présentant une variabilité naturelle et multi-échelle. En Europe, les argilites, roches sédimentaires détritiques terrigènes caractérisées par une granulométrie très fine (*infra* 3,9 μm), et les roches carbonées à tendance argileuse, sont des roches très étudiées dans un contexte énergétique de confinement de déchets radioactifs en formation géologique profonde, et d'exploitation ou de stockage de ressources carbonées. Cet article présente une méthode utilisée pour caractériser la variabilité de la microstructure de ce type de matériau aux petites échelles. La méthode est également applicable à d'autres géomatériaux finement divisés tels que les matériaux cimentaires ou granulaires. La méthode consiste à partitionner une image initiale 2D (ou un volume 3D) suffisamment large d'un échantillon de roche argileuse, en sous-échantillons appelés domaines, de taille égale $D \times D$ (ou D^3 pour un volume). L'échantillon initial et chaque sous-échantillon sont caractérisés par une propriété p dont la valeur leur est propre, la méthode permet ainsi de calculer l'incertitude sur la mesure de p en fonction de la taille des sous-échantillons. Le partitionnement de l'image initiale est effectué plusieurs fois afin d'obtenir plusieurs jeux de données de p en fonction de D , permettant de déterminer la fonction mathématique caractérisant l'incertitude sur la mesure de p par rapport à D , et de déterminer des surfaces ou volumes élémentaires de p en fonction d'une erreur relative donnée et d'un nombre d'échantillons. Un exemple type est présenté en 2D sur la roche de Bowland. L'incertitude sur la mesure de p sera la même pour un échantillon de grande taille que pour plusieurs échantillons de petite taille. Les résultats montrent que pour des erreurs relatives très faibles (typiquement inférieures ou égales à 1 %), les surfaces élémentaires de la

fraction argileuse sont pluricentimétriques. Pour caractériser la microstructure de ce type de matériau avec des méthodes d'imagerie et en tenant compte d'erreurs faibles sur la propriété mesurée, des échantillons de tailles plus réduites et un nombre plus élevé d'échantillons répartis aléatoirement, sont donc recommandées par rapport à un seul échantillon de grande taille.

Conflits d'intérêts

Les auteurs déclarent n'avoir aucun lien d'intérêt concernant les données publiées dans cet article

Remerciements. Les auteurs remercient Lin Ma, Kamel Madi et Ernest Rutter (université de Manchester) pour leur collaboration au projet, ainsi que Pengcheng Qin, Angelo Simonetto Pessutto, Giulio Sciarra (GeM, Centrale Nantes) et Philippe Cosenza (IC2MP, université de Poitiers) pour leurs discussions constructives. Ce travail a été financé en partie par le projet européen H2020 716 Research and Innovative Program sous le nom de ShaleXEnvironnement (grant No. 640979), UK-EPSC (EP/I02249X/1) et UK-NERC (NE/M001458/1).

Références

- Andrews IJ. 2013. The Carboniferous Bowland Shale gas study: geology and resource estimation. In: BGS Report.
- Bauer-Plaindoux C, Tessier D, Ghoreychi M. 1998. Propriétés mécaniques des roches argileuses carbonatées : importance de la relation calcite-argile. *C R Acad Sci Ser IIA Earth Planet Sci* 326 (4): 231–237.
- Bennett RH, Bryant WR, Hulbert MH. 1991. Microstructure of fine-grained sediments. From mud to shale. In: *Frontiers in Sedimentary Geology*. New York: Springer, pp. 582.
- Bonin B. 1998. Deep geological disposal in argillaceous formations: studies at the Tournemire test site. *J Contam Hydrol* 35(1–3): 315–330.
- Bonnelye A, Schubnel A, David C, *et al.* 2017a. Elastic wave velocity evolution of shales deformed under uppermost crustal conditions. *J Geophys Res Solid Earth* 122(1): 130–141.
- Bonnelye A, Schubnel A, David C, *et al.* 2017b. Strength anisotropy of shales deformed under uppermost crustal conditions. *J Geophys Res Solid Earth* 122(1): 110–129.
- Bossart P, Meier PM, Moeri A, Trick T, Mayor JC. 2002. Geological and hydraulic characterisation of the excavation disturbed zone in the Opalinus Clay of the Mont Terri Rock Laboratory. *Eng Geol* 66 (1–2): 19–38.
- Bossart P, Bernier F, Birkholzer J, *et al.* 2018. Mont Terri rock laboratory, 20 years of research: introduction, site characteristics and overview of experiments. In: *Mont Terri Rock Laboratory, 20 Years*. Birkhäuser: Cham, pp. 3–22.
- Buckman J, Mahoney C, Bankole S, *et al.* 2018. Workflow model for the digitization of mudrocks. *Geol Soc Lond Spec Publ* 484: SP484–SP482.
- Cabrera J, Beaucaire C, Bruno G, *et al.* 2001. Projet Tournemire – Synthèse des programmes de recherche 1995–1999. In: *Rapport IPSN: DPRE/SERGD:01-19*.
- Chalmers GR, Bustin RM, Power IM. 2012. Characterization of gas shale pore systems by porosimetry, pycnometry, surface area, and field emission scanning electron microscopy/transmission electron

- microscopy image analyses: examples from the Barnett, Woodford, Haynesville, Marcellus, and Doig units. *AAPG Bull* 96(6): 1099–1119.
- Charpentier D, Cathelineau M, Mosser-Ruck R, Bruno G. 2001. Évolution minéralogique des argilites en zone sous-saturée oxydée : exemple des parois du tunnel de Tournemire (Aveyron, France). *CR Acad Sci Paris Sci Terre Planètes* 332: 601–607.
- Cnudde V, Boone MN. 2013. High-resolution X-ray computed tomography in geosciences: a review of the current technology and applications. *Earth Sci Rev* 123: 1–17.
- Cosenza P, Hédan S, Valle V. 2016. Caractérisation non destructive de la zone endommagée des galeries souterraines excavées dans les roches argileuses. *Rev Fr Geotech* (148): 4.
- Cosenza P, Fauchille AL, Prêt D, Hédan S, Giraud A. 2019. Statistical representative elementary area of shale inferred by micromechanics. *Int J Eng Sci* 142: 53–73.
- David C, Robion P, Menéndez B. 2007. Anisotropy of elastic, magnetic and microstructural properties of the Callovo-Oxfordian argillite. *Phys Chem Earth A/B/C* 32(1–7): 145–153.
- Desbois G, Urai JL, Kukla PA, Konstanty J, Baerle C. 2011. High-resolution 3D fabric and porosity model in a tight gas sandstone reservoir: a new approach to investigate microstructures from mm- to nm-scale combining argon beam cross-sectioning and SEM imaging. *J Pet Sci Eng* 78(2): 243–257.
- Desbois G, Höhne N, Urai JL, Bésuelle P, Viggiani G. 2017. Deformation in cemented mudrock (Callovo-Oxfordian Clay) by microcracking, granular flow and phyllosilicate plasticity: insights from triaxial deformation, broad ion beam polishing and scanning electron microscopy. *Solid Earth* 8(2): 291.
- Dvorkin J. 2009. Digital rock physics bridges scales of measurement. In: *Rock Physics E&P*.
- Fauchille AL, Hédan S, Prêt D, Valle V, Cabrera J, Cosenza P. 2014. Relationships between desiccation cracking behavior and microstructure of the Tournemire clay rock by coupling DIC and SEM methods. In: *Proceedings of IS on Geomechanics from Micro to Macro*, Cambridge, UK. Leiden, The Netherlands: CRC Press/Balkema, pp. 1421–1424.
- Fauchille AL. 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 doctorat. France: Université de Poitiers.
- Fauchille AL, Hédan S, Valle V, Prêt D, Cabrera J, Cosenza P. 2016. Multi-scale study on the deformation and fracture evolution of clay rock sample subjected to desiccation. *Appl Clay Sci* 132: 251–260.
- Fauchille AL, Ma L, Rutter E, Chandler M, Lee PD, Taylor KG. 2017. An enhanced understanding of the Basinal Bowland shale in Lancashire (UK), through microtextural and mineralogical observations. *Mar Pet Geol* 86: 1374–1390.
- Fauchille AL, van den Eijnden AP, Ma L, *et al.* 2018. Variability in spatial distribution of mineral phases in the Lower Bowland Shale, UK, from the mm- to μm -scale: Quantitative characterization and modelling. *Mar Pet Geol* 92: 109–127.
- Fauchille AL, Hédan S, Valle V, Prêt D, Cabrera J, Cosenza P. 2019. Effect of microstructure on hydric strain in clay rock: A quantitative comparison. *Appl Clay Sci* 182: 105244.
- Figueroa Pilz F, Dowey PJ, Fauchille AL, Courtois L, Bay B, Ma L, Taylor KG, Mecklenburgh J, Lee PD. 2017. Synchrotron tomographic quantification of strain and fracture during simulated thermal maturation of an organic-rich shale, UK Kimmeridge Clay. *J Geophys Res Solid Earth* 122(4): 2553–2564.
- Gaboreau S, Prêt D, Tinseau E, Claret F, Pellegrini D, Stammose D. 2011. 15 years of in situ cement–argillite interaction from Tournemire URL: Characterisation of the multi-scale spatial heterogeneities of pore space evolution. *Appl Geochem* 26(12): 2159–2171.
- Gaboreau S, Robinet JC, Prêt D. 2016. Optimization of pore-network characterization of a compacted clay material by TEM and FIB/SEM imaging. *Microporous Mesoporous Mater* 224: 116–128.
- Garcia MH, Rabaute A, Yven B, Guillemot D. 2011. Multivariate and spatial statistical analysis of Callovo-Oxfordian physical properties from lab and borehole logs data: towards a characterization of lateral and vertical spatial trends in the Meuse/Haute-Marne Transposition Zone. *Phys Chem Earth A/B/C* 36(17–18): 1469–1485.
- Gasc-Barbier M, Cosenza P, Ghoreychi M, Chanchole S, Tessier D. 2000. Conception d'un essai triaxial à succion contrôlée. *CR Acad Sci Earth Planet Sci* 330: 97–103.
- Gasc-Barbier M, Chanchole S, Bérest P. 2004. Creep behavior of Bure clayey rock. *Appl Clay Sci* 26(1–4): 449–458.
- Gaucher E, Robelin C, Matray JM, *et al.* 2004. ANDRA underground research laboratory: interpretation of the mineralogical and geochemical data acquired in the Callovian–Oxfordian formation by investigative drilling. *Phys Chem Earth A/B/C* 29(1): 55–77.
- Ghorbani A, Zamora M, Cosenza P. 2009. Effects of desiccation on the elastic wave velocities of clay-rocks. *Int J Rock Mech Min Sci* 46(8): 1267–1272.
- Hammes U, Hamlin HS, Ewing TE. 2011. Geologic analysis of the Upper Jurassic Haynesville Shale in east Texas and west Louisiana. *AAPG Bull* 95(10): 1643–1666.
- Hédan S, Cosenza P, Valle V, Dudoignon P, Fauchille AL, Cabrera J. 2012. Investigation of the damage induced by desiccation and heating of Tournemire argillite using digital image correlation. *Int J Rock Mech Min Sci* 51: 64–75.
- Hédan S, Fauchille AL, Valle V, Cabrera J, Cosenza P. 2014. One-year monitoring of desiccation cracks in Tournemire argillite using digital image correlation. *Int J Rock Mech Min Sci* 68: 22–35.
- Hédan S, Valle V, Cabrera J, Cosenza P. 2018. A new approach to quantify the anisotropy of hydromechanical strains in clay-rock at the gallery scale. *Int J Rock Mech Min Sci* 111: 45–53.
- Houben ME, Barnhoorn A, Wasch L, Trabucho-Alexandre J, Peach CJ, Drury MR. 2016. Microstructures of early jurassic (toarcian) shales of northern Europe. *Int J Coal Geol* 165: 76–89.
- Jarvie DM. 2012. Shale resource systems for oil and gas: Part 2—Shale-oil resource systems.
- 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. *Int J Solids Struct* 40(13–14): 3647–3679.
- Keller LM, Schuetz P, Erni R, *et al.* 2013. Characterization of multi-scale microstructural features in Opalinus Clay. *Microporous Mesoporous Mater* 170: 83–94.
- Ketcham RA, Carlson WD. 2001. Acquisition, optimization and interpretation of X-ray computed tomographic imagery: applications to the geosciences. *Comput Geosci* 27(4): 381–400.
- Klaver J, Desbois G, Urai JL, Littke R. 2012. BIB-SEM study of the pore space morphology in early mature Posidonia Shale from the Hils area, Germany. *Int J Coal Geol* 103: 12–25.
- Klaver J, Desbois G, Littke R, Urai JL. 2015. BIB-SEM characterization of pore space morphology and distribution in postmature to overmature samples from the Haynesville and Bossier Shales. *Mar Pet Geol* 59: 451–466.
- Lemmens H, Richards D. 2013. Multiscale Imaging of Shale Samples in the Scanning Electron Microscope. In: *AAPG Memoir 102: Electron Microscopy of shale hydrocarbon reservoirs*, 27, p. 35.

- Lerouge C, Robinet JC, Debure M, *et al.* 2018. A deep alteration and oxidation profile in a shallow clay aquitard: Example of the Tégulines Clay, East Paris Basin, France. *Geofluids*.
- Ma L, Taylor KG, Lee PD, Dobson KJ, Dowe PJ, Courtois L. 2016. Novel 3D centimetre-to nano-scale quantification of an organic-rich mudstone: the Carboniferous Bowland Shale, Northern England. *Mar Pet Geol* (72): 193–205.
- Ma L, Fauchille AL, Dowe PJ, *et al.* 2017. Correlative multi-scale imaging of shales: a review and future perspectives. *Geol Soc Lond Spec Publ* 454: SP454–SP411.
- Meier T, Rybacki E, Reinicke A, Dresen G. 2013. Influence of borehole diameter on the formation of borehole breakouts in black shale. *Int J Rock Mech Min Sci* 62: 74–85.
- Milner M, McLin R, Petriello J. 2010. Imaging texture and porosity in mudstones and shales: comparison of secondary and ion-milled backscatter SEM methods. In: Canadian unconventional resources and international petroleum conference. Society of Petroleum Engineers.
- Montès HG, Duplay J, Martinez L, Escoffier S, Rousset D. 2004. Structural modifications of Callovo-Oxfordian argillite under hydration/dehydration conditions. *Appl Clay Sci* 25: 187–194.
- Newport SM, Jerrett RM, Taylor KG, Hough E, Worden RH. 2018. Sedimentology and microfacies of a mud-rich slope succession: in the Carboniferous Bowland Basin, NW England (UK). *J Geol Soc* 175(2): 247–262.
- Noiret A. 2009. Contribution à la caractérisation du comportement géomécanique des roches couverture des réservoirs pétroliers. Thèse de doctorat. France: Institut national polytechnique de Lorraine.
- Nussbaum C, Bossart P, Amann F, Aubourg C. 2011. Analysis of tectonic structures and excavation induced fractures in the Opalinus Clay, Mont Terri underground rock laboratory (Switzerland). *Swiss J Geosci* 104(2): 187.
- Okay G, Cosenza P, Ghorbani A, *et al.* 2013. Localization and characterization of cracks in clay-rocks using frequency and time-domain induced polarization. *Geophys Prospect* 61(1): 134–152.
- Pettijohn FJ. 1957. Sedimentary rocks (vol. 2). New York: Harper & Brothers.
- Prêt D, Sammartino S, Beaufort D, Meunier A, Fialin M, Michot LJ. 2010. A new method for quantitative petrography based on image processing of chemical element maps: part I. Mineral mapping applied to compacted bentonites. *Am Mineral* 95(10): 1379–1388.
- Pham QT, Vales F, Malinsky L, Minh DN, Gharbi H. 2007. Effects of desaturation–resaturation on mudstone. *Phys Chem Earth A/B/C* 32 (8–14): 646–655.
- Robinet JC, Sardini P, Coelho D, *et al.* 2012. Effects of mineral distribution at mesoscopic scale on solute diffusion in a clay-rich rock: example of the Callovo-Oxfordian mudstone (Bure, France). *Water Resour Res* 48(5).
- Robinet JC, Sardini P, Siitari-Kauppi M, Prêt D, Yven B. 2015. Upscaling the porosity of the Callovo-Oxfordian mudstone from the pore scale to the formation scale; insights from the 3H-PMMA autoradiography technique and SEM BSE imaging. *Sediment Geol* 321: 1–0.
- Rybacki E, Herrmann J, Wirth R, Dresen G. 2017. Creep of posidonia shale at elevated pressure and temperature. *Rock Mech Rock Eng* 50 (12): 3121–3140.
- Sammartino S, Bouchet A, Prêt D, Parneix JC, Tevissen E. 2003. Spatial distribution of porosity and minerals in clay rocks from the Callovo-Oxfordian formation (Meuse/Haute-Marne, Eastern France) – implications on ionic species diffusion and rock sorption capability. *Appl Clay Sci* 23(1–4): 157–166.
- Sardini P, El Albani A, Pret D, Gaboreau S, Siitari-Kauppi M, Beauforts D. 2009. Mapping and quantifying the clay aggregate microporosity in medium-to coarse-grained sandstones using the 14C-PMMA method. *J Sediment Res* 79(8): 584–592.
- Shen WQ, Shao JF, Kondo D, Gatmiri B. 2012. A micro–macro model for clayey rocks with a plastic compressible porous matrix. *Int J Plast* 36: 64–85.
- Soe AKK, Osada M, Takahashi M, Sasaki T. 2009. Characterization of drying-induced deformation behaviour of Opalinus Clay and tuff in no-stress regime. *Environ Geol* 58(6): 1215–1225.
- Sone H, Zoback MD. 2013. Mechanical properties of shale-gas reservoir rocks—Part 1: static and dynamic elastic properties and anisotropy. *Geophysics* 78(5): D381–D392.
- Stavropoulou E, Andò E, Tengattini A, *et al.* 2018. Liquid water uptake in unconfined Callovo Oxfordian clay-rock studied with neutron and X-ray imaging. *Acta Geotech*: 1–15.
- Thury M. 2002. The characteristics of the Opalinus Clay investigated in the Mont Terri underground rock laboratory in Switzerland. *C R Phys* 3(7–8): 923–933.
- Tsang CF, Barnichon JD, Birkholzer J, Li XL, Liu HH, Sillen X. 2012. Coupled thermo-hydro-mechanical processes in the near field of a high-level radioactive waste repository in clay formations. *Int J Rock Mech Min Sci* 49: 31–44.
- Wang L. 2012. Micromechanical experimental investigation and modelling of strain and damage of argillaceous rocks under combined hydric and mechanical loads. PhD thesis of École polytechnique, France.
- Wang L, Bornert M, Chanchole S, *et al.* 2013. Microscale experimental investigation of the swelling anisotropy of the Callovo-Oxfordian argillaceous rock. *Clay Min* 48: 391–402.
- Wang L, Bornert M, Héripré E, Chanchole S, Pouya A, Halphen B. 2015. Microscale insight into the influence of humidity on the mechanical behavior of mudstones. *J Geophys Res Solid Earth* 120 (5): 3173–3186.
- Wentworth CK. 1922. A scale of grade and class terms for clastic sediments. *J Geol* 30(5): 377–392.
- Yang DS, Bornert M, Chanchole S, Gharbi H, Valli P, Gatmiri B. 2012. Dependence of elastic properties of argillaceous rocks on moisture content investigated with optical full-field strain measurement techniques. *Int J Rock Mech Min Sci* 53: 45–55.
- Yven B, Sammartino S, Geraud Y, Homand F, Villieras F. 2007. Mineralogy, texture and porosity of Callovo-Oxfordian argillites of the Meuse/Haute-Marne region (eastern Paris Basin). *Mem Soc Geol Fr* 178(1): 73–90.

Citation de l'article : Anne-Laure Fauchille, Bram van den Eijnden, Kevin Taylor, Peter David Lee. Détermination de la taille et du nombre d'échantillons devant être analysés en laboratoire pour la caractérisation statistique de la microstructure d'une roche argileuse. Rev. Fr. Geotech. 2020, 165, 1.