

# Observation des micromécanismes de déformation et d'endommagement des argilites sous sollicitation hydrique

L. WANG<sup>a</sup>, B. HALPHEN<sup>b</sup>, M. BORNERT<sup>c</sup>, A. POUYA<sup>c</sup>, D. YANG<sup>a</sup>, E. HÉRIPRÉ<sup>a</sup>,  
S. CHANCHOLE<sup>a</sup>

a. LMS, École polytechnique, 91128 Palaiseau Cedex, France

b. Sétra, 46 avenue Aristide Briand, 92225 Bagneux Cedex, France

c. Laboratoire Navier, École des Ponts ParisTech, 77455 Marne-la-Vallée cedex, France

## Résumé :

*La déformation et l'endommagement des argilites sous sollicitation hydrique sont observés au MEB environnemental. La déformation est mesurée par corrélation d'images à l'échelle micrométrique des zones argileuses entre les grains carbonatés et de quartz et révèle un couplage hydromécanique complexe. On montre l'apparition d'une déformation irréversible lors d'un cycle hydrique, ainsi qu'un endommagement sous la forme d'un réseau de microfissures localisées dans la phase argileuse ou aux interfaces grain-matrice, dont la morphologie dépend de la vitesse et du sens du chargement hydrique.*

## Abstract :

*Deformation and damage of argillaceous rocks are studied at microscale with help of the environmental scanning electron microscope. The deformation at micrometric scale of the argillaceous zones in between calcite and quartz grains, evaluated by the digital image correlation technique, shows a complex hydro-mechanical coupling. Some irreversible deformations are observed in the clay matrix during a hydric cycle, as well as local damage in the form of a network of microcracks, located in the bulk of the clay matrix and/or at the interface between clay and other mineral particles. The morphology of this network has been observed to be dependent on the speed of the variation of the relative humidity.*

**Mots clefs :** argilites, Microscopie électronique environnementale, corrélation d'images numériques, déformation, endommagement

## 1 Introduction

Les argilites sont envisagées comme un massif d'accueil potentiel pour le stockage souterrain des déchets radioactifs. La ventilation du tunnel pendant la construction provoque une désaturation de la roche et une évolution de ses propriétés. La connaissance du comportement hydromécanique des argilites est ainsi un enjeu essentiel pour maîtriser la sûreté à long terme des stockages. Les argilites présentent une multiplicité d'échelles d'hétérogénéités allant de la structure nanométrique des feuillets d'argile à l'alternance décimétrique des couches géologiques et leur comportement est très sensible à leur teneur en eau du fait de la nature argileuse de leur matrice. Cet article présente une étude micromécanique des mécanismes de déformation et d'endommagement des argilites sous sollicitation hydrique, à l'échelle de la structure composite des argilites formées d'une matrice argileuse renforcée de particules minérales de nature variée, dont la taille caractéristique varie entre le micromètre et quelques centaines de micromètres. Le microscope électronique à balayage environnemental (MEBE) couplé à la technique de corrélation d'images numériques (CIN) s'avère être un outil puissant pour révéler et quantifier les mécanismes locaux. La taille de la zone d'observation est de quelques centaines de micromètres, suffisante pour observer un ensemble de grains de carbonates, quartz et de minéraux argileux représentatifs de la structure composite des argilites. Le contraste naturel de la roche, notamment de la phase argileuse, révélé par la haute définition des images enregistrées, autorise une analyse par CIN qui donne accès à une évaluation quantitative du champ de déformation. On peut ainsi étudier les mécanismes microscopiques de déformation et d'endommagement des argilites sous sollicitation hydrique, pour lesquels l'interaction des structures composites joue un rôle très important.

L'étude présentée étend à l'observation par microscopie électronique environnementale un travail antérieur [3,9] utilisant la microscopie optique et le gain en termes de résolution spatiale et de base de mesure des déformations locales est d'un facteur supérieur à 15

## 2 Matériau et procédure expérimentale

### 2.1 Matériau

Le matériau étudié est l'argilite du Callovo-Oxfordien du secteur de Bure aux confins des départements de la Meuse et de la Haute-Marne. L'étude minéralogique a mis en évidence différents composants dans ce matériau [2]. Il est principalement constitué d'une phase argileuse dominante (20~50% : majoritairement illite et inter-stratifiés illite/smectite), d'une phase carbonatée (22~37%) et d'une phase quartzreuse (10~40%).

Grâce à l'analyse chimique EDS qui complète l'observation au MEBE en électrons rétrodiffusés (BSE), les trois phases principales des argilites sont identifiées grossièrement : carbonate ( $\text{CaCO}_3$ ), quartz (tectosilicate :  $\text{SiO}_2$ ), et minéraux argileux (phyllosilicate : Al, Si etc.). Trois éléments ont servi à identifier ces trois phases des argilites dans les cartographies élémentaires : la carte de l'élément Ca révèle le carbonate, celle de l'élément Al, les minéraux argileux, et les zones plus claires dans la carte de l'élément Si sont la signature du quartz (Figure 1). Ces données sur l'organisation microstructurale des argilites de Meuse/Haute-Marne servent à mieux comprendre ultérieurement les mécanismes de déformation et d'endommagement du matériau.

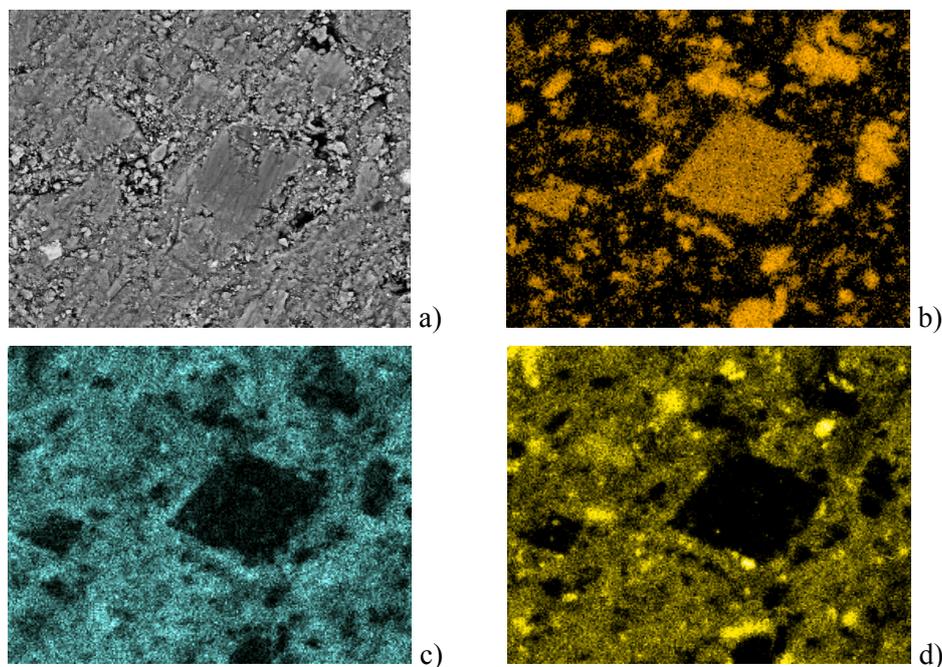


Figure 1. Microstructure et analyse chimique des argilites (taille de l'observation :  $128 \times 110,5 \mu\text{m}^2$ ) : a) Image BSE, b) carte de l'élément Ca, c) carte de l'élément Al, d) carte de l'élément Si.

Les échantillons d'argilite ont été fournis par l'ANDRA; ils proviennent du sondage EST28031, à la profondeur -553 m. Les éprouvettes sont préparées sous la forme de lames de faible épaisseur ( $\leq 1 \text{ mm}$ ) ; leur extension plane est de quelques millimètres. La faible épaisseur permet une diffusion hydrique à peu près unidimensionnelle, qui facilite l'analyse des résultats, et une diminution du temps d'atteinte de l'équilibre hydrique. La surface d'observation a été progressivement polie au papier abrasif, du grain 800 au grain 4000.

### 2.2 Dispositif expérimental et procédure des essais

L'investigation des mécanismes de déformation et d'endommagement des argilites sous sollicitation hydrique est effectuée sous un MEBE (*FEI Quanta 600*). Le MEBE est un microscope électronique à balayage qui permet d'observer l'échantillon dans des conditions de vide partiel contrôlées en température, pression, et donc en hygrométrie.

Le processus général de l'essai est le suivant : on refroidit d'abord l'échantillon en utilisant une platine Peltier à basse température ( $2^\circ\text{C}$ ) tout en imposant une pression de vapeur d'eau dans la chambre qui conduit

à l'humidité relative recherchée. On préfère travailler à basse température pour préserver une bonne qualité d'image. En effet, l'augmentation de la pression de la chambre du MEB dégrade cette dernière, et la pression de vapeur diminue avec la température pour une humidité relative fixée. On doit cependant éviter le gel de l'eau. Après la stabilisation de l'état initial, on humidifie les argilites par paliers, par le réglage de la pression de la chambre du MEB à température d'échantillon constante. Entre deux palier, on fait varier l'humidité relative à une vitesse fixée, préalablement choisie, puis on maintient la pression jusqu'à l'équilibre complet du système. On enregistre à intervalles réguliers au cours de ce maintien des images numériques en haute définition (12 MPixels) de plusieurs zones d'observation dont la longueur caractéristique est la centaine de micromètres. Cette échelle permet de distinguer les composantes structurelles de l'argilite et de mettre ainsi en évidence l'hétérogénéité de leurs déformations. L'équilibre du système est détecté par l'absence d'évolution décelable par DIC entre deux images acquises successivement. Le palier suivant peut alors être abordé.

## 2.3 Mesure de champs de déformation

Les images enregistrées par le MEBE sont traitées par la méthode CIN (corrélation d'image numérique) qui permet une mesure de champs de déplacement et par dérivation [1] de déformation à une certaine échelle. Le principe de cette technique consiste à comparer deux images en appariant des points homologues par maximisation d'un critère de corrélation qui mesure la ressemblance des voisinages de ces points [4] [7]. Le logiciel CMV développé au LMS (Laboratoire de Mécanique des Solides, école polytechnique) et à Navier (ENPC) a été utilisé. Dans notre étude, la fenêtre de corrélation retenue est de  $30 \times 30$  pixels, soit 1 à 2  $\mu\text{m}$  selon le grandissement considéré. À l'issue de la mise en correspondance entre l'image initiale et l'image déformée par la CIN, on détermine le champ de déformation par dérivation discrète selon les principes décrits dans [1]. La base de mesure locale retenue est de 60 pixels, soit de 2 à 4  $\mu\text{m}$ , à comparer à la soixantaine de micromètres de l'étude précédente [9] par microscopie optique. Les composantes planes du gradient de la transformation sont décomposées en rotation et distorsion plane, dont on retient par exemple les deux valeurs principales E1 et E2. La même décomposition peut être appliquée au gradient moyen sur la zone d'observation ou sur toute sous-zone d'intérêt de cette dernière. Notons que cette approche ne donne pas accès aux gradients selon la direction normale à la surface et que les composantes hors plan du déplacement en surface sont ignorées. Il est ainsi impossible de déterminer localement la variation de volume. On utilise toutefois les cartes E1+E2 comme des indicateurs qualitatifs de la déformation volumique. D'un autre côté, les cartes du déviateur plan de déformation E1-E2 sont bien les signatures d'une déformation déviatorique 3D.

## 3 Résultats et analyse

Une dizaine d'essais ont été effectués, dont trois représentatifs sont retenus dans cet article (Table 1). La plupart des résultats sont présentés à travers l'essai 1, mais les essais 2 et 3 servent à mettre en évidence l'influence de la vitesse de chargement sur l'endommagement des argilites sous sollicitation hydrique.

Table 1. Résumé des processus des essais

Essai	Vitesse de chargement (HR%/min)	Chemin de chargement (HR)
1	5	65% - 75% - 85% - 75% - 65% - 18%
2	20	66% - 80% - 90%
3	2	75% - 82% - 90% - 95% - 99%

### 3.1 Déformation des argilites sous sollicitation hydrique

Les résultats expérimentaux mettent en évidence l'apparition d'une déformation irréversible à l'issue d'un cycle humidification-dessiccation. En effet, sur les cartes de la déformation à désaturation HR=65% (Figure 2), on constate une déformation résiduelle dans certaines zones des minéraux argileux. L'irréversibilité apparaît plus évidente dans la carte E1-E2, correspondant donc à un cisaillement résiduel. En revanche, la carte E1+E2 présente en majorité une réversibilité, sauf dans certaines zones où l'on observe une contraction résiduelle apparente.

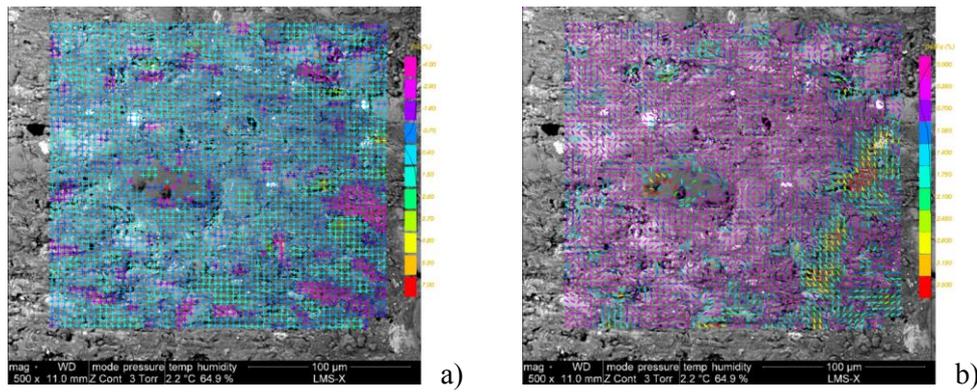


Figure 2. Déformation irréversible à l'état de désaturation HR=65% : a) E1+E2, b) E1-E2.

Pour quantifier ces observations et mieux comprendre l'apparition de cette hétérogénéité de déformation, on choisit deux zones dans la matrice argileuse dont l'une présente des déformations irréversibles (zone 2) et l'autre non (zone1), et on suit l'histoire de déformation de chaque zone (Figure 3). Pendant l'humidification, les courbes représentant la déformation pour les deux zones sont comparables, le déviateur de déformation dans la zone 1 étant d'ailleurs plus grand que celui dans la zone 2. En revanche, on constate une différence évidente dans les deux zones pendant la dessiccation : la carte de la déformation dans la zone 1 revient à peu près à l'état original quand l'échantillon revient à HR=65% alors qu'un cisaillement résiduel, dont la valeur peut atteindre 4.5%, apparaît dans la zone 2. Ceci conduit à se demander pourquoi une déformation résiduelle apparaît dans une zone (zone 2) dont le déviateur maximal de la déformation est relativement faible.

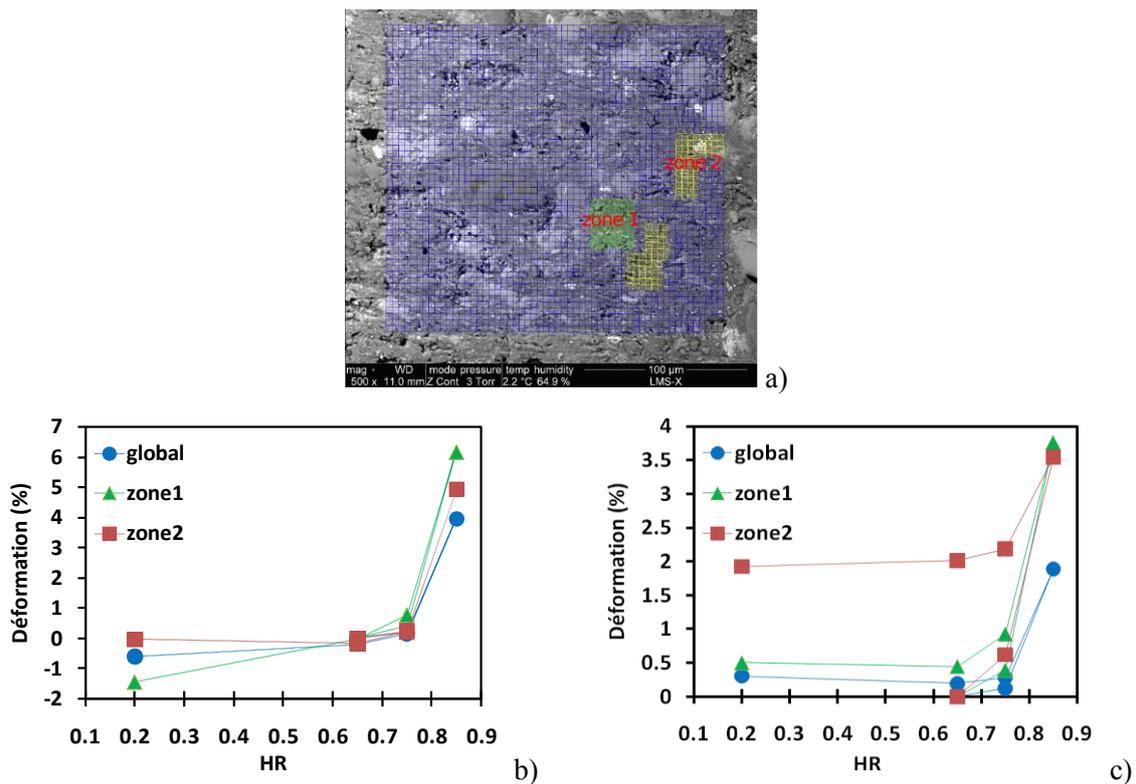


Figure 3. Déformation des différentes zones dans la matrice argileuse : a) définition de 2 zones b) E1+E2 c) E2-E1

Nous attribuons cette variabilité du comportement dans les deux zones aux différents mécanismes de déformation des argilites sous sollicitation hydrique. La déformation dans la zone 1 semble correspondre plutôt à un gonflement-dégonflement libre des minéraux argileux. Ce gonflement est anisotrope : cette anisotropie due à la stratification in situ génère un déviateur de déformation assez important, même plus grand que celui de la zone 2. En revanche, la déformation dans cette zone 1 est réversible pendant la saturation-désaturation. Ceci coïncide avec les résultats de Montes [5] qui constate un gonflement libre d'un

agrégat d'argile dont l'amplitude peut atteindre 50% en restant réversible. L'explication de l'apparition de la déformation irréversible dans la zone 2 relève d'un mécanisme additionnel. D'après nous, ce deuxième mécanisme est plutôt lié à la contrainte mécanique générée par l'incompatibilité des déformations. En effet, l'argilite est un matériau très hétérogène : la matrice argileuse gonfle pendant la saturation alors que les inclusions (carbonate, quartz etc.) ne gonflent pas [6] [9]. La matrice argileuse est elle-même hétérogène : la smectite est sensible à l'eau et gonfle alors que la kaolinite et l'illite ne gonflent guère, et l'hétérogénéité vient aussi de la variation d'orientation des particules [8]. Ces diverses hétérogénéités peuvent provoquer une incompatibilité des déformations hydriques qui engendre un champ de contrainte qui produit une déformation irréversible quand le seuil d'élasticité de la matrice argileuse est dépassé.

En résumé, on distingue deux mécanismes de déformation des argilites sous chargement hydrique (Equation 1) : gonflement-rétreint des minéraux argileux en fonction de l'état hydrique ( $\varepsilon_H$ ), et déformation mécanique générée par l'incompatibilité des déformations à l'échelle microscopique ( $\varepsilon_M$ ). Le comportement comporte toujours un couplage hydromécanique, même sous sollicitation purement hydrique. Lorsque l'incompatibilité est modérée,  $\varepsilon_M$  est élastique et réversible, mais il est aussi possible de mobiliser des mécanismes de déformation irréversibles, ce qui induit alors une irréversibilité des déformations hydriques macroscopiques et une évolution de microstructure.

$$\varepsilon = \varepsilon_H + \varepsilon_M \quad (1)$$

### 3.2 Endommagement des argilites sous sollicitation hydrique

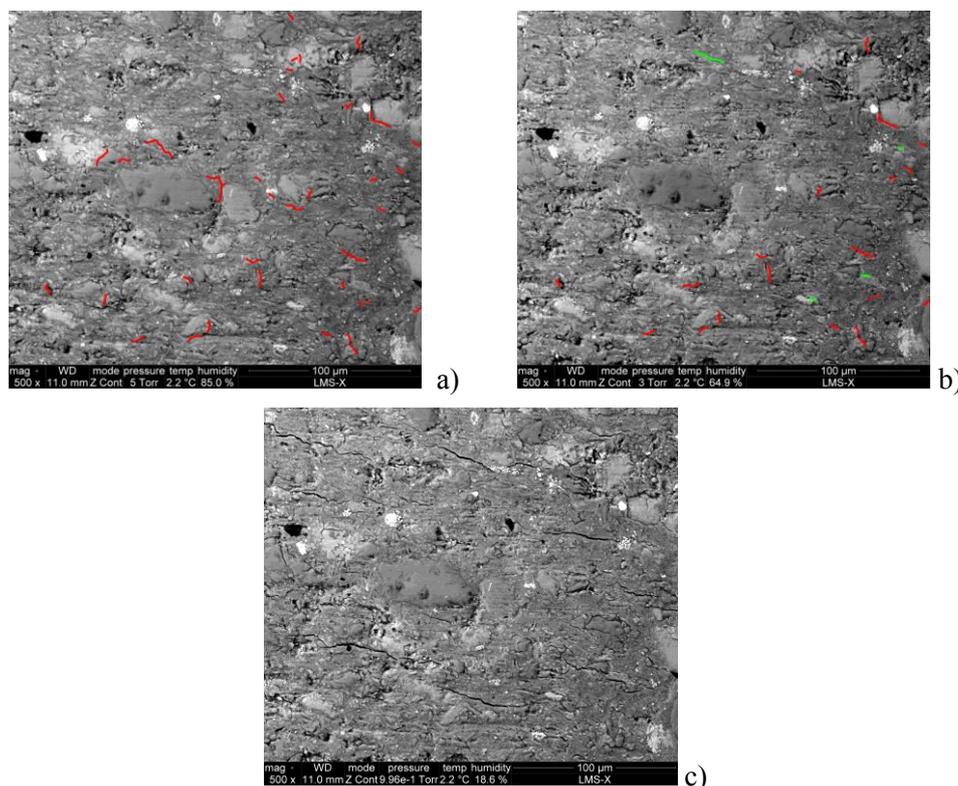


Figure 4. Microfissuration des argilites sous sollicitation hydrique (essai 1) : a) saturation HR=85%, b) désaturation HR=65%, c) désaturation HR=18%.

Une microfissuration apparaît à humidité relative élevée, de l'ordre de 80% d'après nos essais. On observe que ces microfissures semblent se trouver soit aux interfaces entre les grains (carbonate, quartz) et la matrice argileuse, soit dans la matrice argileuse (Figure 4-a: en rouge). Notons que les microfissures sont ici microscopiques : l'ouverture des fissures est inférieure à  $1\mu\text{m}$ , et leur longueur est inférieure à  $50\mu\text{m}$ . Il est impossible ou très difficile d'observer une telle microfissuration à l'œil nu ou à travers un microscope optique.

Quand l'état hydrique redescend à HR=65%, certaines microfissures disparaissent alors que d'autres sont toujours visibles avec des ouvertures diminuées. En même temps, certaines nouvelles microfissures plutôt liées à la dessiccation apparaissent (Figure 4-b: en vert). Cette microfissuration liée à la dessiccation est

encore plus visible quand on a plus fortement désaturé (Figure 4-c). Différente de celle liée à l'humidification, la microfissuration de dessiccation intervient plutôt dans la matrice argileuse.

On étudie aussi l'influence de la vitesse de chargement hydrique sur la microfissuration grâce aux essais 2 et 3. Les microfissures couvrent toute la surface à HR=90% sous une vitesse de variation hydrique importante (Figure 5-a), par contre sous une vitesse de variation hydrique plus faible (2%HR/min, Figure 5-b) aucune microfissuration n'est visible même à HR=99%. On en conclut que la densité de fissuration est d'autant plus importante que la vitesse de chargement hydrique est grande, ainsi que l'extension et l'ouverture des fissures.

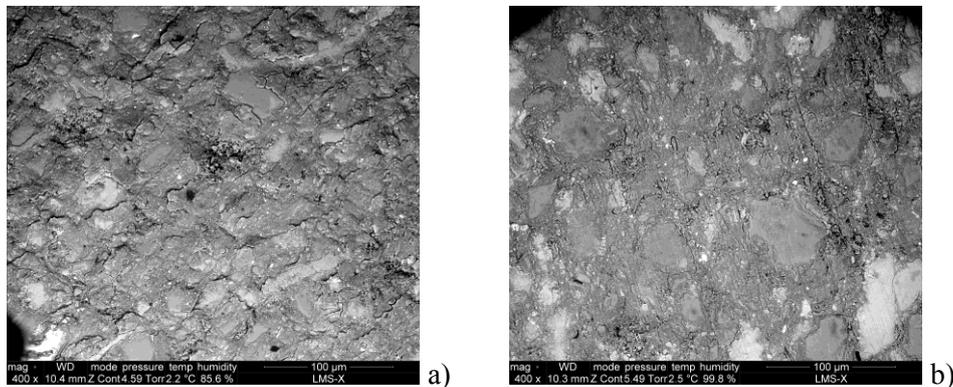


Figure 5. Influence de la vitesse de chargement sur la fissuration : a) HR=90%, essai 2, b) HR=99%, essai 3.

#### 4 Conclusions et perspectives

Le comportement des argilites comporte toujours un couplage hydromécanique, même sous sollicitation hydrique pure, du fait de la réponse des minéraux argileux à une sollicitation hydrique et des contraintes d'interaction des composants de l'argilite à l'échelle microscopique. On a montré que ce couplage peut induire une déformation locale irréversible de la phase argileuse. À humidité relative élevée, une microfissuration se produit dans la matrice argileuse ou à l'interface grain-matrice. Au cours de la dessiccation, une autre microfissuration apparaît plutôt dans la matrice argileuse. Et la vitesse de sollicitation hydrique influe fortement sur cette microfissuration. Un système de chargement mécanique compatible avec la platine Peltier est en cours de développement et permettra de poursuivre cette analyse micromécanique des argilites sous sollicitations hydromécaniques combinées.

#### References

- [1] Allais L., Bornert M., Bretheau T., Caldemaison D. Experimental characterization of the local strain field in a heterogeneous elastoplastic material. *Acta Metall. Mater.*, 42 (11): 3865-3880, 1994.
- [2] ANDRA. Référentiel du Site Meuse/Haute-Marne: Tome 2, 2005.
- [3] Bornert M., Valès F., Gharbi H., Nguyen Minh D., Multiscale full-field strain measurements for micromechanical investigations of the hydromechanical behaviour of clayey rocks, *Strain*, Vol. 46/1, pp. 33-46, 2010
- [4] Doumalin P., Microextensométrie locale par corrélation d'images numériques : application aux études micromécaniques par microscopie électronique à balayage. Thèse Ecole Polytechnique, 2000.
- [5] Montes G., Etude expérimentale de la sorption d'eau et du gonflement des argiles par microscopie électronique à balayage environnementale (ESEM) et l'analyse digitale d'images. Thèse Université Louis Pasteur Strasbourg, 2002.
- [6] Sammartino S., Construction d'un modèle conceptuel d'organisation de la porosité et de la minéralogie dans les argilites du site de Bure. Rapport Andra n°D.RP.0ERM.01.018, 2001.
- [7] Sutton M.A., Orteu J., Schreier H.W., Image correlation for shape, motion and deformation measurements. Springer Presse, 2009.
- [8] Tessier D., Etude expérimental de l'organisation des matériaux argileux : hydratation, gonflement et structuration au cours de la dessiccation et de la réhumidification. Thèse Université Paris VII, 1984.
- [9] Valès F., Modes de déformation et d'endommagement de roches argileuses profondes sous sollicitations hydro-mécaniques. Thèse Ecole Polytechnique, 2008.