HAL
open science

Étude de l'évolution hydromécanique d'un carbonate après altération chimique. Application des méthodes de corrélation d'images 2D et 3D à la mesure des champs locaux de déformation lors d'essais mécaniques à différentes échelles.

Louis Zinsmeister

To cite this version:

Louis Zinsmeister. Étude de l'évolution hydromécanique d'un carbonate après altération chimique. Application des méthodes de corrélation d'images 2D et 3D à la mesure des champs locaux de déformation lors d'essais mécaniques à différentes échelles.. Sciences de la Terre. Ecole Polytechnique X, 2013. Français. NNT : . pastel-00955351

HAL Id: pastel-00955351

https://pastel.hal.science/pastel-00955351v1

Submitted on 4 Mar 2014

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

T H È S E

pour obtenir le grade de

Docteur en Sciences de l'Ecole Polytechnique

Mention : Mécanique

Présentée et soutenue par

Louis ZINSMEISTER

Étude de l'évolution hydromécanique d'un carbonate après altération chimique. Application des méthodes de corrélation d'images 2D et 3D à la mesure des champs locaux de déformation lors d'essais mécaniques à différentes échelles.

Thèse dirigée par Jean RAPHANEL, Alexandre DIMANOV et Jérémie DAUTRIAT

Préparée au LABORATOIRE DE MÉCANIQUE DES SOLIDES

Soutenue le 26/11/2013

Jury :

Rapporteurs :	Pr. Patrick BAUD	EOST, Strasbourg
	Pr. Jean SULEM	Laboratoire NAVIER Ecole des Ponts Paristech
Examinateurs :	Pr. Christian DAVID	Université de Cergy Pontoise
	Pr. Yves GUEGUEN	Ecole Normale Supérieure, Paris
Directeur :	Dr. Jean RAPHANEL	Ecole Polytechnique
Co-Directeurs :	Dr. Jérémie DAUTRIAT	IFPEN et CSIRO
	Dr. Alexandre DIMANOV	Ecole Polytechnique
Encadrant :	Dr. Michel BORNERT	Laboratoire NAVIER Ecole des Ponts Paristech

"Découvrir, c'est voir la même chose que les autres

et penser autrement."

Albert Szent-Györgyi. (Nobel de Médecine en 1937)

Remerciements

Cette thèse s'est déroulée sur trois sites de la région parisienne : l'Institut Français du Pétrole et des Energies Renouvelables, le laboratoire de mécanique du solide (LMS) de l'Ecole Polytechnique, et le laboratoire Navier de l'Ecole des Ponts. Derrière ces noms se trouvent les chercheurs qui m'ont encadré et permis de mener ce travail à bien. Et mes remerciements se tournent en premier lieu vers eux.

Je remercie profondément mon responsable à l'IFPEN, Jérémie Dautriat, pour sa disponibilité tant pour les problèmes rencontrés en laboratoire que pour les questions que je me posais en géomécanique. Tu as été un moteur de ma motivation et tes compétences scientifiques m'ont beaucoup apporté. J'espère un jour réaliser à nouveau l'ascension du plateau de Saclay dans une de tes voitures de collection !
Je ne peux changer de laboratoire sans avoir une pensée pour Nicolas Gland. Ce projet était à son initiative et faisait suite à la thèse de Jérémie Dautriat. Même après son arrivée en Malaisie, il a continué à se tenir au courant de l'avancée de ce projet et à apporter ses idées ainsi qu'un renfort supplémentaire pendant la rédaction de ce manuscrit. Pour cette opportunité que tu m'as donnée en créant ce sujet de thèse et le bijou qu'est la presse triaxiale miniaturisée ainsi que ton aide, je te remercie.

Mes pensées prennent ensuite le RER B, sortie Lozère, et montent cette raide pente qui mène au LMS. Je remercie Jean Raphanel, mon directeur de thèse, pour m'avoir fait confiance après les premiers entretiens, son apport sur des questions théoriques auxquelles je n'aurais pas pensé, ainsi que sa gentillesse au quotidien et dans les moments difficiles. Vient ensuite Alexandre Dimanov, co-directeur de cette thèse ; tu es un expérimentateur toujours en mouvement, toujours prêt à dessiner ta nouvelle idée d'invention et tu as toujours été disponible pour moi, même quand nous étions les derniers en France ! J'espère pouvoir retourner avec toi à Fontainebleau pour faire du bloc, où nous nous étions rencontrés toi et ta famille quelques jours après l'entretien.

Enfin, pour finir cette grande équipe, direction le RER A, sortie Noisy - Champs. Je remercie Michel Bornert, co-encadrant de cette thèse, pour son temps passé à m'expliquer les principes de la corrélation d'image (parfois dans la douleur et tard),pour m'avoir appris à traiter mes images pour la corrélation et avoir su être à l'écoute des mes idées parfois farfelues. Merci à toi, sans ta patience et ton expertise je n'aurais pu appréhender cette méthode.

Je voudrais maintenant remercier les rapporteurs, monsieur Jean Sulem et monsieur Patrick Baud, pour le temps qu'ils ont passé à corriger ce travail et l'intérêt qu'ils y ont porté par leur questions et leurs remarques. Je remercie par ailleurs les deux examinateurs, monsieur Yves Gueguen et monsieur Christian David pour leurs questions et ressentis vis à vis de cette thèse. A titre plus personnel, je remercie Christian David pour m'avoir mis en contact à la fin de mon master 2 avec Alexandre Dimanov, me permettant d'obtenir cette thèse.

Olga Vizika-Kavvadias et Jean Marc Lombard ont permis de financer ce projet à l'IFPEN et je leur en suis très reconnaissant.

L'ensemble des résultats de cette thèse n'auraient pu être obtenus sans l'aide au quotidien d'un grand nombre de personnes qui m'ont prêté main forte dans mes démarches expérimentales. Je remercie donc très chaleureusement Jean Guelard pour son aide (entre autre) pour le développement du panneau d'altération. Dans mes soucis expérimentaux quotidiens j'ai été soutenu par Jean Marc Nez et bien d'autres qui ne sont plus à l'IFPEN. Dans mes démarches d'imagerie, j'ai été aidé à l'IFPEN par Marie Claude Lynch qui m'a très

souvent dépanné pour me scanner des échantillons ainsi que par Corinne Fichen. Je n'oublie pas Elysabeth Rosenberg qui m'a aidé pour améliorer la qualité des images µ-tomographiques mais qui est aussi revenue tardivement à l'IFPEN pour acquérir des volumes supplémentaires. Merci à vous.
Enfin, je remercie Elisabeth Bemer et Souhail Youssef pour avoir pris le relais après le départ de Jérémie. Vos conseils pour m'aider à interpréter mes données en fin de thèse m'ont été d'un grand secours, ainsi que votre soutien plus personnel dans les périodes difficiles.
Je n'oublie pas bien entendu les collègues, Samir, Yannick, Stephane, Dane dont les discussions autour de la machine à café et dans les couloirs m'ont enrichi dans mes connaissances sur le milieu pétrolier.

Au LMS je voudrais remercier : Pierre Valli pour son aide à la préparation des échantillons pour les essais mécaniques in-situ, Hakim Gharbi pour son aide avec les acquisitions optiques mais aussi Eva Heripré et Alexandre Tanguy pour m'avoir aidé et formé à l'utilisation du MEB.

Au laboratoire Navier je remercie Nicolas Lenoir pour son aide, et sa disponibilité pour acquérir des volumes 3D et m'expliquer le fonctionnement de son µ-tomographe.

Je remercie tous les thésards et post-doc que j'ai cottoyés pendant ces trois ans, ils étaient si nombreux que je risque d'en oublier : Mathieu (Sel), Mathieu (Barre d'Hopkinson), David, Ababacar, Barbara, Fabien, Jessica... du côté du LMS.

Du côté de l'IFPEN on trouvera : Laura, Josianne, Van Hung, Minh Tuan. Mention spéciale à la fine équipe de co bureaux : Clément et Valentin, on a passé de très bons moments, félicitations aux deux papas ! Clément, on va pouvoir regarder la suite de Game of Throne à Pau ensemble je crois. Baptiste et Clémentine, chez les géochimistes, je ne vous en veux pas de faire des courbes à deux points. Rezki, merci pour le couscous royal ! Merci d'avoir été là dans les moments durs mais aussi dans les moments de bonheur ! Je vous souhaite tout le bonheur du monde.

Enfin, les amis extérieurs : Yasin avec qui les échanges autour de l'oolithe blanche sont toujours aussi fructueux (tu sais comment je sais que t'es... ? Tu joues au stick à Street Fighter), Sylvain et sa passion partagée pour le cinéma, Aurélie la fan de dinosaures, Yael et son manque de cheveux, Gabrielle et son nouveau chat, Camille la grimpeuse, François le biologiste, Marion la photographe animalière... J'espère vivre encore de grand moment avec vous les amis, bon courage dans vos carrières !

Mon cercle d'amis plus loin de la science qui a permis de montrer que les Corbeaux sont une espèce intelligente, mention spéciale à Dorian : on va pêcher à la mouche ensemble.

Mes deux anciens colocataires : Jean Denis et Alexis, merci pour ces grands moments de collocation !

Je finirais en remerciant ma famille dans son ensemble et particulièrement mes parents, Michel et Sylvaine, ainsi que ma soeur Julia pour leur renfort moral pendant ces longues années d'études. A toi soeurette, la prochaine thèse de la famille est la tienne !

Table des matières

INTRODUCTION……...9

I CONTEXTE DE L'ETUDE ET ELEMENTS BIBLIOGRAPHIQUES 17

I.1- L'INJECTION DU CO_2 COMME MOYEN DE REDUCTION DES GAZ A EFFET DE SERRE 19

I.1-A) Les différents moyens de stockage du CO_2 19

I.1-A-a) L'injection de CO_2 comme moyen de récupération amélioré du pétrole. 19

I.1-A-b) L'injection de CO_2 dans des veines de charbon non exploitées et les roches basaltiques ou granitiques. 20

I.1-A-c) L'injection en aquifère salin profond 21

I.1-B) Les études menées en laboratoire sur les processus de dissolution des carbonates 24

I.1-C) Effet de l'altération sur les propriétés d'écoulement des roches et leur microstructure 29

I.1-C-a) Impact sur les réseaux poreux 29

I.1-C-b) Impact sur la microstructure 31

I.2- COMPORTEMENT MECANIQUE DES ROCHES POREUSES SOUS CONTRAINTES..... 33

I.2-A) L'étude des grès et leurs régimes de rupture..... 33

I.2-B) Applications aux carbonates..... 36

I.2-C) Altération et effet sur le comportement mécanique..... 38

I.3- L'UTILISATION DE LA CORRELATION D'IMAGES NUMERIQUE COMME MOYEN D'IDENTIFICATION DES MICROMECANISMES IMPLIQUES DANS LE COMPORTEMENT MECANIQUE DES MATERIAUX 41

I.3-A) Développement de la CIN..... 41

I.3-B) Application aux matériaux à faibles déformations et aux carbonates 42

II METHODOLOGIE EXPERIMENTALE ET DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX 45

II.1- SELECTION DES ECHANTILLONS ET DESCRIPTION PETROPHYSIQUE 53

II.1-A) Mesure de la porosité par scanner médical et sélection des échantillons..... 53

II.1-B) Les mesures de la porosité..... 55

II.1-B-a) Mesure de la porosité par pesée 55

II.1-B-b) Mesure de porosité par saturation à la saumure..... 56

II.1-B-c) Mesure de porosité par injection d'Hélium 57

II.1-C) Description du réseau poreux..... 58

II.1-C-a) Analyse de la forme de la porosité par résonance magnétique du proton 58

II.1-C-b) Analyse de la taille d'entrée de pore par injection de mercure à haute pression 60

II.1-D) Équipement et protocole d'altération 61

II.1-D-a) Dispositif expérimental..... 61

II.1-D-b) Mesure de perméabilité à la saumure 63

II.1-D-c) Protocole d'altération 64

II.2- ANALYSES MICROSTRUCTURALES 67

II.2-A) Microscope optique et cathodoluminescence 67

II.2-B) Microscope électronique à balayage (MEB)..... 69

II.2-C) Microtomographe de laboratoire 70

II.3- CARACTERISATION MECANIQUE DU MATERIAU 71
II.3-A) Dispositif et préparation des échantillons 71
II.3-A-a) Description de la presse triaxiale AT40 72
II.3-A-b) Préparation et mise en place de l'échantillon 74
II.3-A-c) Paramètres mesurés dans le cadre de notre étude 75
II.3-B) Protocole de la campagne d'essais 76
II.4- LA METHODE DE CIN 77
II.4-A) Acquisition du champ de déplacement 78
II.4-A-a) Éléments mathématiques d'obtention du champ de déplacement 80
II.4-A-b) Passage à la 3D 82
II.4-B) Obtention de la déformation 83
II.4-B-a) Calcul des déformations en 2D 83
II.4-B-b) Calcul des déformations en 3D 86
II.4-B-c) Sources d'erreurs en CIN 87
II.5- DESCRIPTION DES TROIS DISPOSITIFS D'ACQUISITION D'IMAGES ET LEURS LIMITES 90
II.5-A) Imagerie optique 90
II.5-B) Imagerie au MEB 92
II.5-C) Imagerie à l'aide d'une cellule triaxiale et de la microtomographie 94

III ÉVALUATION DES CARACTERISTIQUES PETROPHYSIQUE ET MICROSTRUCTURALES DE NOTRE ROCHE ET LEUR EVOLUTION AVEC L'ALTERATION 99

III.1- LE CALCAIRE DE LAVOUX A L'ETAT SAIN 101
III.1-A) Etude microstructurale 102
III.1-A-a) Blocs de LGG 103
III.1-A-b) Bloc de LGF 106
III.1-B) Caractérisation pétrophysique 108
III.1-C) Caractérisation des propriétés d'écoulement 112
III.2- ÉVOLUTION DES PARAMETRES PETROPHYSIQUES ET DE LA MICROSTRUCTURE 114
III.2-A) Evolution de la porosité 114
III.2-A-a) Homogénéité de l'altération sur les macros échantillons 114
III.2-A-b) Etude de la porosité des échantillons fils après découpe 116
III.2-A-c) Evolution des courbes des propriétés RMN et IMHP 119
III.2-B) Evolution de la microstructure 121
III.2-C) Evolution de la perméabilité 125
III.2-C-a) Mesure unidirectionnelle de la perméabilité 125
III.2-C-b) Mesure bidirectionnelle de la perméabilité 126
III.3- MISE EN EVIDENCE DE L'EXISTENCE DE PARTICULES DECROCHEES APRES ALTERATION 127
III.3-A) Mesures indirectes de l'existence des particules fines 127
III.3-B) Visualisation des fines au sein du milieu poreux 130
III.3-B-a) Protocole d'altération miniaturisé 130
III.3-B-b) Méthode de soustraction d'images 133

IV RESULTATS MACROSCOPIQUES A L'AIDE D'ESSAIS TRIAXIAUX ET CIN-2D MACROSCOPIQUE 139

IV.1- ÉVOLUTION MECANIQUE DU CALCAIRE DE LAVOUX A L'ECHELLE MACROSCOPIQUE 141
IV.1-A) Essais à faible confinement : évaluation des modules élastiques 141
IV.1-B) Comportement mécanique à la rupture 145
IV.2- APPLICATION DE LA CIN 2D MACROSCOPIQUE 150
IV.2-A) Méthode d'estimation et de minimisation des erreurs 151
IV.2-B) Exemples de cartographie 154
IV.2-B-a) Les échantillons sains 156
IV.2-B-b) L'échantillon altéré trois fois 160
IV.2-B-c) Les échantillons altérés six fois 162
IV.2-B-d) Modes de rupture des trois types d'échantillons 165
IV.2-B-e) Discussion sur ces observations 166
IV.2-C) Discussion des courbes et des modules obtenus par CIN 166
IV.2-C-a) Courbe des déformations moyennes pour l'échantillon sain 167
IV.2-C-b) Courbe des déformations moyennes pour l'échantillon altéré trois fois 168
IV.2-C-c) Courbe des déformations moyennes pour l'échantillon altéré six fois 169
IV.2-C-d) Conclusion sur les essais macroscopiques et les trois essais de CIN 2D optique 171

V RESULTATS DE CIN-2D MEB ET DE CIN-3D ISSUS DE LA MINI PRESSE TRIAXIALE 173

V.1- APPLICATION DE LA MESURE DE CHAMPS AUX ECHELLES MICROSCOPIQUE EN 2D 175
V.1-A) L'apport du MEB 176
V.1-A-a) Précisions sur le fonctionnement du MEB 176
V.1-A-b) Source d'erreurs en corrélation 2D MEB 179
V.1-A-c) Méthodes d'estimation et de minimisation des erreurs 179
V.1-A-d) Marquage des surfaces d'observation 181
V.1-B) Cartographies issues du MEB 185
V.1-B-a) Matériau sain 185
V.1-B-b) Matériau altéré six fois 188
V.1-B-c) Conclusion 191
V.2- LA METHODE DE CORRELATION 3D 192
V.2-A) Précision sur l'acquisition d'images microtomographiques 192
V.2-A-a) Acquisition 192
V.2-A-b) Reconstruction 193
V.2-B) Méthodes d'estimation et de minimisation des erreurs en CIN 3D 195
V.3- LES RESULTATS OBTENUS EN CIN-3D 198
V.3-A) Premier essai uniaxial 198
V.3-B) Les premiers essais à 5MPa de confinement 199
V.3-B-a) Cartographie de l'échantillon sain 200
V.3-B-b) Cartographie de l'échantillon altéré trois fois 203
V.3-B-c) Cartographie de l'échantillon altéré six fois 207
V.3-B-d) Conclusions sur ces trois essais 211

VI CONCLUSION 216

BIBLIOGRAPHIE 220
Annexe 1 Panorama de lames minces 221
Annexe 2 Tableaux récapitulatifs de perméabilité et porosité 223
Annexe 3 Cartes de déformations de LGF_A 224
Annexe 4 Publication SCA-2012 225
Annexe 5 Publication ARMA-2013 238

Introduction générale

La lutte contre le réchauffement climatique est devenue depuis une dizaine d'années, sinon centrale, du moins parmi les préoccupations d'importance des gouvernements des pays industrialisés. En effet, malgré les incertitudes quant à la quantification du phénomène dans les années à venir, les experts du GIEC (groupement intergouvernemental d'experts sur l'évolution climatique, qui vient de rendre public le 1er volume de son 5eme rapport lors de la conférence qui s'est tenue à Stockholm le 27 septembre 2013) sont formels : l'impact de l'activité humaine sur l'évolution climatique du fait de la libération massive dans l'atmosphère de gaz à effet de serre est avéré. Il apparaît sans controverses possibles que le globe a gagné environ 0,9°C en moyenne depuis 1900, avec une augmentation particulièrement forte depuis les années 80 à nos jours. En conséquence, du fait de la fonte accélérée de la calotte de l'Antarctique et de la banquise arctique, et de l'expansion thermique des océans, le niveau moyen des mers est monté d'une vingtaine de centimètres en à peine un peu plus d'un siècle. Simultanément, les épisodes de vagues de chaleur ou de précipitations abondantes ont sensiblement augmenté sur la plupart des terres émergées et en particulier dans l'hémisphère Nord. Les périodes de sécheresse et leur intensité, ainsi que l'activité des cyclones tropicaux sont également en augmentation notable. Le réchauffement global et la montée des eaux ont des conséquences directes en termes de modifications à court terme des habitats, de la reproduction et des migrations des espèces. Cependant, des effets secondaires sont aussi constatés, comme la variation des taux de salinité locaux (perturbation du cycle de l'eau), lesquels pourraient avoir un impact sur les grands courants marins qui assurent les transferts thermiques du globe, et dont la modification pourrait avoir des conséquences imprévisibles à plus long terme. L'augmentation spectaculaire depuis le début du 20eme siècle de la concentration de CO_2 d'origine anthropique dans l'atmosphère est incontestablement considérée comme principalement responsable des effets de serre qui ont entraîné une absorption nette d'énergie du système climatique.

Je cite (extrait d'une traduction préliminaire du rapport du GIEC) : " L'influence humaine a été détectée dans le réchauffement de l'atmosphère et de l'océan, les changements du cycle de l'eau planétaire, la fonte des neiges et glaces, l'élévation du niveau marin moyen, et la modification de certains extrêmes climatiques. Il existe plus de confiance dans ce résultat depuis le RE4. Il est extrêmement probable que l'influence humaine a été la cause principale du réchauffement observé depuis le milieu du XXe siècle".

Ainsi, en seulement quelques décennies l'ensemble des activités industrielles et économiques humaines liées aux énergies fossiles (production d'énergie et transports), ou à la fabrication de matériaux cimentaires en est arrivée à sérieusement menacer nos sociétés.

La tendance pour l'avenir semble plus que pessimiste, étant donné que nos économies restent fortement dépendantes des énergies fossiles et que les économies dites émergentes des années 90 (Chine, Inde, Brésil…) sont devenues des acteurs de premier ordre dans l'économie mondiale, avec des besoins énergétiques croissants. Aussi, la poursuite du réchauffement climatique semble déjà une réalité inéluctable. Seule la question concernant la vitesse de ce réchauffement reste encore posée, puisque les différents scénarios envisagés sur la base de modèles numériques indiquent une augmentation allant de 0,5 à 4 ° d'ici la fin du siècle, avec une très forte probabilité que l'augmentation se situe au-delà de 2,5°. Il est très clair que l'humanité fait face à un défi, sinon une menace, d'ampleur inégalée et que le ralentissement du réchauffement climatique nécessite une réduction drastique des gaz à effets de serre d'origine humaine. Citation du rapport : « De nouvelles émissions de gaz à effet de serre impliqueront une poursuite du réchauffement et des changements affectant toutes les composantes du système climatique. Limiter le changement climatique demandera une réduction significative et durable des émissions de gaz à effet de serre ».

Les efforts pour aller dans cette voie peuvent s'orienter soit sur une baisse massive de la consommation énergétique, ce qui apparaît économiquement peu réaliste, soit sur le développement de techniques de captage et de stockage durable du CO_2 d'origine anthropique.

Afin de limiter la vitesse du réchauffement climatique, des efforts multiples peuvent porter simultanément sur plusieurs axes. Une des voies concerne l'amélioration du rendement des moteurs thermiques (baisse de consommation) et des habitats (meilleure isolation). Une deuxième voie concerne le développement des énergies alternatives (éolienne, solaire, carburants issus de la biomasse …) pour limiter l'utilisation des énergies fossiles, qui sont à l'origine de l'émission massive de gaz à effet de serre comme le CO_2. Cependant, ces voies ne peuvent constituer la seule réponse dans l'immédiat, car les énergies alternatives (ou renouvelables) sont intrinsèquement intermittentes et nécessitent le développement de moyens de stockage d'énergie (batteries, hydro-motricité, air compressé…), qui pour l'heure manquent cruellement, et dont la capacité actuelle ne permet de situer ces énergies que comme sources d'appoint. Par ailleurs, l'économie mondiale est si fortement dépendante des

hydrocarbures d'origine fossile que la transition énergétique serait très longue. Aussi, un des axes incontournables de recherche et de développement porte sur le stockage géologique profond et durable du CO_2. Un des moyens les plus étudiés est le stockage par injection dans les aquifères salins profonds. Les motivations industrielles à stocker le CO_2 dans les couches géologiques profondes dépendent de la rentabilité à réaliser ce processus. Pour le moment, l'incitation est surtout liée à l'image de marque des entreprises concernées auprès du grand public. Mais des gouvernements comme celui du Danemark ou de la Finlande mettent aussi en place des taxes sur les émissions de gaz polluants, lesquelles se répercutent sur le prix des produits finis, favorisant *in fine* les produits les moins « polluants » et/ou l'investissement dans la dépollution (stockage). La mise en place en Nouvelle-Zélande d'une taxe « carbone » assortie d'un marché de « droits à polluer » a stimulé les intérêts économiques du stockage du CO_2. Une telle démarche est seulement en cours d'étude en France, mais cette perspective a déjà motivé de nombreux industriels à réaliser des études sur le stockage de CO_2.

Les techniques de captage, de conditionnement et d'injection du CO_2 dans le sous-sol sont éprouvées. Mais, le devenir à long terme des réservoirs dans lesquels le CO_2 est injecté est encore inconnu. Depuis 2010 Total exploite un site pilote à Lacq (France) qui permet le stockage du CO_2 émis par une chaudière industrielle dans l'ancien réservoir gazier (épuisé) de Rousse. Ce site a permis de démontrer la faisabilité du processus d'injection et de développer les techniques afin d'améliorer les rendements de transport et d'injectivité du CO_2 en condition réelles. Cependant, la durée d'exploitation de ce site est encore beaucoup trop courte en comparaison avec les temps de stockage envisagés pour avoir le recul nécessaire à une analyse de faisabilité à long terme, de plus les conditions d'injection de ce site ne sont pas comparables à celles d'injection dans un aquifère salin profond, qui ne peut pas être simplement assimilé à un réservoir gazier de petite taille, comme à Rousse. L'injection de CO_2 dans la saumure présente au sein des aquifères salins profonds perturbe l'équilibre chimique entre la roche réservoir et le fluide du réseau poreux qui s'acidifie. Dans le cas de réservoirs carbonatés cette acidification résulte en la dissolution de la roche, avec comme possibles conséquences sa fragilisation, l'endommagement et la fracturation, c'est-à-dire la mise en péril de l'intégrité du réservoir. De ce fait, il est nécessaire de réaliser des études expérimentales sur l'évolution des propriétés hydromécaniques des roches carbonatées dans des conditions d'altération chimique, dont les résultats puissent servir à développer des modèles numériques prédictifs de l'évolution à long terme des réservoirs.

C’est précisément le but de cette thèse, qui vise à caractériser l’évolution des propriétés hydromécaniques des roches réservoirs carbonatées, sujettes à l’altération homogène, qui est caractéristique des conditions à moyen et long terme au loin du puits d’injection.

Le travail, principalement expérimental, a reposé sur la réalisation d’échantillons de carbonate de Lavoux altérés, suivant un protocole spécifique permettant d’obtenir une altération homogène avec augmentation de porosité contrôlée. En premier lieu, nous avons étudié les propriétés d'écoulement de notre carbonate, ses caractéristiques microstructurales et pétrophysiques. La seconde partie de cette thèse a consisté à caractériser les propriétés mécaniques de notre matériau à l'aide d'une campagne d'essais triaxiaux classiques menés sur des échantillons sains et altérés à différents degrés d'altération. Ces essais ont permis de mettre en évidence une transition dans les régimes de rupture du matériau, en relation avec l’état d'altération. Afin de caractériser les localisations qui préfigurent cette transition et de les relier à la microstructure pour mieux comprendre le mode d’action de l’altération, nous avons appliqué une méthode de corrélation d’images numériques obtenues par observations plane (2D) et en volume (3D), à trois échelles d'investigation. L’étude des échelles macroscopique et microscopique, réalisée par observations en deux dimensions, fait suite à des travaux antérieurs menés au laboratoire sur différents géomatériaux et utilise le même type d’équipements que ceux déjà mis en place. Une nouveauté apportée par cette thèse repose sur l'utilisation d'une presse triaxiale miniaturisée, permettant l'acquisition d'images dans l'enceinte d'un microtomographe, afin de permettre l’étude par la corrélation d’images 3D. Les résultats obtenus grâce à cet équipement novateur ont permis de décrire la localisation de très petites déformations et d’observer l’activation des mécanismes sous-jacents *in-situ*, ce qui offre de très grands avantages par rapport aux techniques classiques d’observation *post-mortem*. La compréhension de la physique de ces mécanismes a aussi été approfondie grâce à l'étude microstructurale et pétrophysique de la roche. Ainsi cette étude intégrée, basée sur l’utilisation de nombreuses techniques expérimentales complémentaires, appliquées à diverses échelles depuis celle de la microstructure jusqu’à celle de l’échantillon représentatif, a permis d’obtenir un faisceau de données et de caractéristiques suffisant pour permettre une meilleure compréhension de la localisation et du développement des mécanismes à la rupture dans les carbonates chimiquement altérés.

L’aboutissement de cette thèse est le résultat de la collaboration de trois équipes, issues de trois laboratoires : le Laboratoire de Mécanique des Solides de l'école polytechnique, de l’Ecole des Ponts Paristech et le Département d'Ingénierie de Réservoir à l'IFPEN. Les

mesures pétrophysiques, les essais triaxiaux et les essais triaxiaux couplés à l'acquisition µ-scanner ont été menés à l'aide du matériel et de l'expertise de l'IFPEN. L'acquisition des images nécessaires à l'ensemble de la corrélation d'images 2D (optique et microscopie à balayage) s'est faite au Laboratoire de Mécanique des Solides. Enfin, le Laboratoire Navier a apporté l'expertise sur la corrélation d'images et une partie des acquisitions au microtomographe nécessaire à l'étude microstructurale de notre roche.
Cette thèse est divisée en six chapitres**. Le premier chapitre** essentiellement bibliographique, s'attachera à présenter le contexte industriel de la thèse, les différentes méthodes de stockage de CO_2 ainsi que les études préliminaires menées en laboratoire pour décrire les processus de dissolution dans les puits d'injection. On rappellera les études mécaniques menées sur des roches réservoir (gréseuses ou calcaires) et la description des comportements de ces roches à la rupture dans des conditions de chargement hydrostatiques ou triaxiales. Enfin, on présentera la méthode de corrélation d'images et ses récents développements pour des applications aux géomatériaux .

Le second chapitre passe en revue l'ensemble des méthodes expérimentales utilisées pour la description pétrophysique et microstructurale de notre carbonate. On y décrit aussi le protocole d'altération homogène et notre protocole de sélection des échantillons. Nous décrirons ces méthodes en descendant dans les échelles d'observations et de mesures. La seconde partie de ce chapitre est dédiée à la description des moyens expérimentaux utilisés pour les essais triaxiaux macroscopiques, ainsi que la description de nos campagnes d'essais mécaniques. La dernière partie décrit la méthode de corrélation d'images en 2D et 3D, ainsi que les caractéristiques techniques des trois dispositifs expérimentaux permettant l'acquisition des images aux différentes échelles de pertinence.

Le troisième chapitre présente dans une première partie la description microstructurale et pétrophysique des deux calcaires de Lavoux étudiés à l'état sain. On insistera en particulier sur la différence entre les deux carbonates qui, bien que présentant une porosité similaire et issus de conditions de dépôt sédimentaire très proches, présentent une différence de perméabilité liée aux différences de microstructure. La seconde partie de ce chapitre concerne la description de ces propriétés après altération. Il met en évidence les mécanismes de dissolution, mais surtout des évolutions différentes de la porosité (linéaire) et de la perméabilité (non linéaire) avec l'altération. Afin d'expliquer ces différences, la dernière

section de ce chapitre présente une nouvelle méthode d'imagerie (basée sur la soustraction d'images 3D) des particules fines bloquées dans la porosité après l'altération, qui sont interprétées comme étant à l'origine des variations non linéaires de perméabilité.

Le quatrième chapitre développe les résultats issus des essais triaxiaux macroscopiques. Au regard des résultats, on observe une transition du domaine de rupture fragile à un domaine de rupture ductile liée à l'altération. Afin de mettre en évidence les mécanismes qui opèrent lors de la sollicitation mécanique, nous avons appliqué la corrélation d'images 2D à des échantillons de taille standard (pluri-centimétrique) soumis à des essais de compression uniaxiale. Les résultats présentés dans la seconde partie montrent que l'altération favorise la localisation des déformations dans des zones de contact entre oolithes.

Enfin, **le cinquième chapitre** est consacré à la CIN 2D et 3D à l'échelle microscopique, utilisant respectivement les images du MEB (avec essai au LMS par machine de compression uniaxiale in-situ) et la microtomographie (avec la cellule miniaturisée de l'IFPEN). Les résultats de ces méthodes ont permis la mise en évidence (au MEB) d'une localisation précoce de la déformation des échantillons altérés six fois (tout comme pour les essais macroscopiques) et l'identification de mécanismes de microfracturation. La corrélation d'images obtenue à partir des volumes microtomographiques a montré le développement de trois types de bandes de cisaillement que nous discutons.

Ce manuscrit de thèse se clôture par **le sixième chapitre** qui propose une synthèse de l'ensemble des résultats présentés pour expliquer l'effet de l'altération sur la microstructure et sur le comportement mécanique du matériau. Nous donnerons enfin quelques perspectives pour prolonger ce travail.

I Contexte de l'étude et éléments bibliographiques

Sommaire

I CONTEXTE DE L'ETUDE ET ELEMENTS BIBLIOGRAPHIQUES 17

I.1- L'INJECTION DU CO_2 COMME MOYEN DE REDUCTION DES GAZ A EFFET DE SERRE 19

I.1-A) Les différents moyens de stockage du CO_2 19

I.1-A-a) L'injection de CO_2 comme moyen de récupération amélioré du pétrole. 19

I.1-A-b) L'injection de CO_2 dans des veines de charbon non exploitées et les roches basaltiques ou granitiques. 20

I.1-A-c) L'injection en aquifère salin profond 21

I.1-B) Les études menées en laboratoire sur les processus de dissolution des carbonates 24

I.1-C) Effet de l'altération sur les propriétés d'écoulement des roches et leur microstructure 29

I.1-C-a) Impact sur les réseaux poreux 29

I.1-C-b) Impact sur la microstructure 31

I.2- COMPORTEMENT MECANIQUE DES ROCHES POREUSES SOUS CONTRAINTES 33

I.2-A) L'étude des grès et leurs régimes de rupture 33

I.2-B) Applications aux carbonates 36

I.2-C) Altération et effet sur le comportement mécanique 38

I.3- L'UTILISATION DE LA CORRELATION D'IMAGES NUMERIQUE COMME MOYEN D'IDENTIFICATION DES MICROMECANISMES IMPLIQUES DANS LE COMPORTEMENT MECANIQUE DES MATERIAUX 41

I.3-A) Développement de la CIN 41

I.3-B) Application aux matériaux à faibles déformations et aux carbonates 42

I.1- L'injection du CO_2 comme moyen de réduction des gaz à effet de serre

I.1-A) Les différents moyens de stockage du CO_2

Le rapport du GIEC (2005) indique que la production annuelle de CO_2 par l'humanité est de 30 milliards de tonnes. Comme nous l'avons indiqué en introduction, une des solutions envisagée pour la réduction de la quantité de CO_2 émis dans l'atmosphère est le stockage géologique du CO_2.

Trois approches pour le stockage du CO_2 sont étudiées. La première est l'injection dans les puits de pétrole en voie de déplétion pour permettre une amélioration des rendements de puits, la deuxième est l'injection dans des mines de charbon ou dans des roches moins conventionnelles pour le stockage comme les basaltes ou les granites, enfin, la troisième voie est l'injection en aquifère salin profond si celui-ci présente des caractéristiques de pièges structuraux.

I.1-A-a) L'injection de CO_2 comme moyen de récupération amélioré du pétrole.

L'exploitation d'un champ pétrolier entraîne une diminution de la pression de pore au sein de ce réservoir (Addis, 1997). Cette perte de pression de pore induit une diminution de la production du puits par l'équilibrage des pressions entre la surface et le réservoir. Afin de compenser cette perte, l'injection de CO_2 dans les couches géologiques réservoirs permet une augmentation de cette pression et une amélioration des rendements du puits. Ce rendement est évalué à 25 à 30% selon les puits en récupération secondaire du pétrole. Les deux attraits principaux de cette méthode sont que l'infrastructure nécessaire à l'injection du CO_2 est déjà présente puisque identique à l'infrastructure de récupération et par ailleurs, la solidité des pièges géologiques n'est plus à prouver puisqu'ils ont servis de pièges pour le pétrole. Cependant, la déplétion des champs peut entraîner des changements dans les capacités d'écoulement d'un réservoir comme la perméabilité (Ostermeier *et al.*, 2001) qu'il est nécessaire d'étudier pour s'assurer de pouvoir injecter le CO_2 dans le réservoir. Son inconvénient majeur reste cependant le transport du CO_2 sur ces gisements qui sont souvent difficilement accessibles (en haute mer pour la plupart des gisements pétroliers) et leur

mauvaise répartition à la surface du globe. La capacité de stockage de ce type de réservoir d'après le rapport du GIEC (2005) serait de 930 milliards de tonnes.

I.1-A-b) L'injection de CO_2 dans des veines de charbon non exploitées et les roches basaltiques ou granitiques.

Lors de l'injection de CO_2 dans des gisements de charbon, le CO_2 va prendre la place du méthane (CH_4) par adsorption à la surface des couches de charbon (Brunauer *et al.*, 1938). Cependant, les estimations de quantité de stockage de ces formations sont d'environ 40 milliards de tonnes de CO_2, ce qui est faible. Par ailleurs la faible perméabilité des couches de charbon ne certifie pas une bonne injectivité du CO_2, rendant difficile l'exploitation de ces veines à moindre coût.

Certaines roches non sédimentaires comme les granites et les basaltes sont envisagées comme site de stockage du CO_2, notamment dans les pays du nord de l'Europe (Flaathen, 2009) et en Inde (Garg et Shukla, 2009) qui possèdent une grande quantité de roche non carbonatées (roches du socle et trappes du Deccan). Les réactions mises en jeu dans ce type de roche sont des réactions de minéralisation du CO_2 par le biais de réaction de carbonatation de certains éléments comme le magnésium ou le calcium en présence de CO_2 (Oelkers *et al.*, 2008). Ce type de stockage est considéré comme le plus sûr à long terme par le GIEC (2005). Il est prometteur, car ces roches sont très bien réparties sur l'ensemble du globe et de très grands volumes pourraient être stockés dans les trappes du Deccan en Inde ou la croûte océanique. Les réactions observées pour ce genre de stockage sont de type :

$$\frac{1}{3}Mg_3Si_2O_5(OH)_4 + CO_2 \rightarrow MgCO_3 + \frac{2}{3}SiO_2 + \frac{2}{3}H_2O \text{ pour une serpentine}$$

$$\frac{1}{2}Mg_2Si\ O_4 + CO_2 \rightarrow MgCO_3 + \frac{1}{2}SiO_2 \text{ pour une olivine}$$

Les études menées sur ce type de stockage sont encore trop récentes pour permettre une évaluation des quantités théoriques de stockage qu'offrent ces roches, cependant, l'aspect peu poreux et très faiblement perméable de ce type de roches est un problème pour une utilisation peu coûteuse.

I.1-A-c) L'injection en aquifère salin profond

L'injection en aquifère salin profond repose sur quatre sortes de piégeages. Mais avant de les présenter, nous allons définir les conditions d'injection du CO_2 ainsi que les paramètres assurant la pérennité de ce stockage.

Afin de stocker la plus grande quantité de CO_2 possible, ce dernier doit être sous une forme dense, non gazeuse. En observant le diagramme de phase (Figure 1) il apparaît que l'état qui correspond le mieux aux conditions de stockage (en pression et température) est l'état supercritique (Law et Bachu., 1996) puisqu'il est atteint dès 7,4 MPa et 31,1°C (Figure 1), soit environ 800 m minimum de profondeur pour un gradient thermique terrestre normal. Dans cet état, le CO_2 possède une viscosité proche de celle d'un gaz (variant de 250 à 322 Pa.s selon les conditions de pression et température) et une densité proche du liquide (0,47 g/cm^3) d'après Gulik (1997). Le fluide peut alors diffuser comme un gaz (facilité d'injection) mais transportera une quantité de matière plus importante.

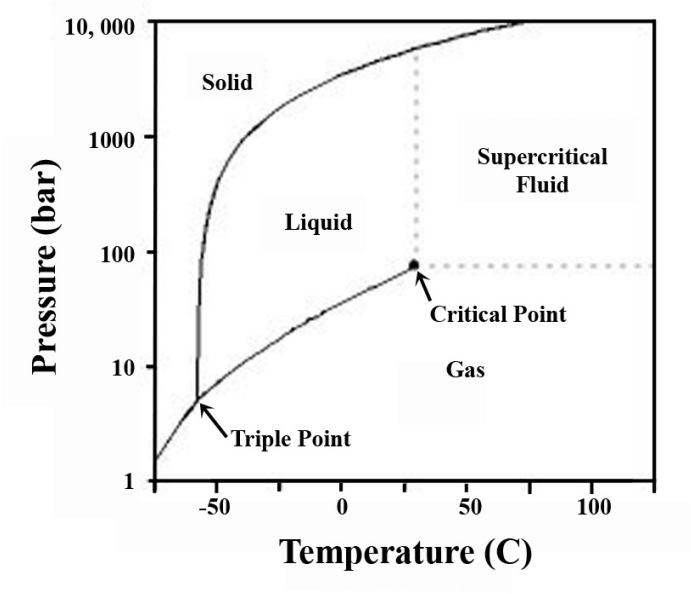


Figure 1 : Diagramme de phase du CO_2

D'après Law *et* Bachu., (1996), une fois ce CO_2 supercritique injecté, il se crée une phase gazeuse qui va se retrouver piégée par différence de densité dans les pièges géologiques, une phase dissoute et une phase immiscible restant sous forme supercritique, ces conclusions sont tirées d'observations d'un bassin en Alberta mais l'auteur en souligne l'applicabilité à tout autre aquifère présentant les mêmes caractéristiques.

Lors de son injection, le CO_2 à l'état supercritique va envahir les pores de la roche réservoir et pouvoir se substituer à la saumure initialement en place. Différents mécanismes de piégeage vont alors s'établir successivement dans le réservoir d'après un rapport du BRGM (2007) réalisé dans le cadre du projet PICOREF :

- ***Le piégeage structurel***

De par sa plus faible densité, le CO_2 va avoir tendance à remonter vers la surface, créant ce que l'on appelle un panache. Cette remontée est stoppée lorsque le CO_2 rencontre une couche imperméable, généralement d'argile ou de sel. Le CO_2 va alors s'accumuler sous ce piège et ce mécanisme constitue la plus importante fraction des capacités de stockage.

- ***Le piégeage résiduel***

Lors de sa remontée et malgré sa faible densité, le CO_2 peut rester piégé au sein des restrictions de pores sous l'effet des forces capillaires. Ce mécanisme est fonction des propriétés intrinsèques de la roche et ne constitue qu'un faible pourcentage de la capacité de stockage.

- ***Le piégeage par solubilisation dans l'eau***

Le CO_2 injecté va pouvoir également se dissoudre en partie dans l'eau de formation, la cinétique de dissolution étant fonction de la surface de contact entre le CO_2 et l'eau. Cette dissolution est également limitée par la concentration à saturation du CO_2 dans l'eau. Cependant, l'eau chargée en CO_2 étant plus dense, elle tend à redescendre dans la formation, entraînant un mouvement de convection au sein du réservoir, et un renouvellement de l'eau salée disponible pour la dissolution. Ce mécanisme de piégeage est lent, mais comme nous le verrons dans la section suivante, de part l'acidification de l'eau du fait du CO_2 dissous, il peut en augmenter la réactivité par rapport à la formation.

- ***Le piégeage minéral***

Le dernier type de mécanisme intervient lorsque le CO_2 est dissous dans une saumure sursaturée en espèces minérales permettant la précipitation de phases secondaires. Chadwick *et al*., (2006) montrent par simulation numérique que 5 % du CO_2 injecté pourrait être piégé par minéralisation en 10.000 ans.

Ces différents mécanismes de piégeage vont cependant tous être couplés à des processus de dissolution lors de l'injection du CO_2.

Le CO_2 injecté va se dissoudre en partie dans l'eau, créant des ions bicarbonate d'après la relation :

$$CO_2 + H_2O \leftrightarrow H_2CO_3$$

$$H_2CO_3 \leftrightarrow H^+ + HCO_3^-$$

Les ions H^+ libérés vont diminuer le pH de la solution. On a alors une altération de la roche par la solution injectée, dans le cas d'un réservoir carbonaté, la réaction est la suivante :

$$CaCO_3 + H^+ \leftrightarrow HCO_3^- + Ca^{2+}$$

Si le carbonate n'est pas pur, les équilibres réactionnels ne sont pas identiques (Chou *et al.*, 1989) et les espèces précipitées ne sont pas nécessairement de la calcite, mais seront fonction des cations présents dans la saumure. Les réactions chimiques peuvent alors modifier fortement la structure de la roche (réseau poreux et matrice solide) et donc avoir un impact notable sur les propriétés hydromécaniques de la formation.

A partir de simulations numériques, André *et al.*, (2007) proposent une description des phénomènes dus à l'injection de CO_2 supercritique en fonction de la distance au puits, la Figure 2 présente une schématisation de cette description. Une première zone proche puits, dans laquelle on ne retrouve que du CO_2 gazeux, montre un assèchement pouvant induire des phénomènes de déshydratation. On observe un mélange de CO_2 gazeux et de saumure dans une deuxième, puis une troisième saturée par une saumure chargée en CO_2. Ces deux zones vont être le lieu d'interactions fluide-roche pouvant donner lieu à des phénomènes de dissolution et précipitation. Enfin, loin du puits, on ne retrouve que l'eau de la formation initiale.

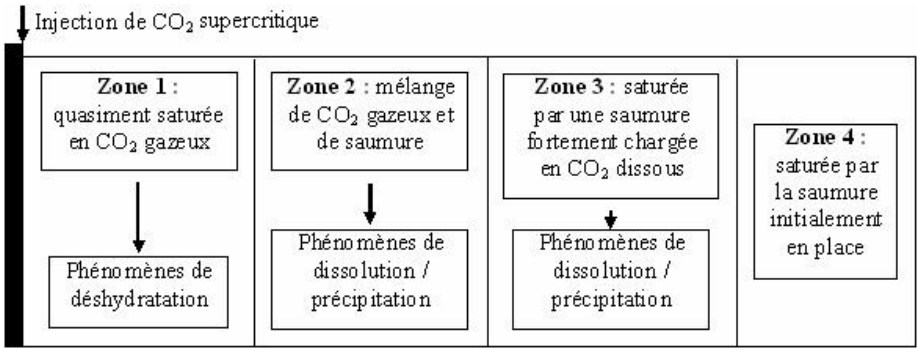


Figure 2 : Phénomènes attendus en fonction de l'éloignement au puits. D'après André et al. (2007)

I.1-B) Les études menées en laboratoire sur les processus de dissolution des carbonates

Les différents phénomènes cités précédemment nécessitent une approche expérimentale afin de mieux contraindre les modèles traduisant le comportement des roches dans les conditions naturelles. Nous allons dans cette section nous intéresser à ces études expérimentales menées à l'échelle de l'échantillon.

A l'échelle du laboratoire et en condition d'injection d'une saumure saturée en CO_2, il a été montré que le régime d'écoulement a une forte influence sur le type d'altération (Daccord *et al.*, 1989; Bazin. 2001; Egermann *et al.*, 2006). Ces études permettent ainsi de différencier deux types de figures d'altération :

- l'altération hétérogène avec génération de wormholes qui peuvent être transportés loin de la surface d'injection, observée à fort débit d'injection ;

- l'altération compacte entraînant une dissolution préférentielle de la zone proche de l'injection, observée pour un faible débit d'injection.

Ces différents régimes de dissolution peuvent êtres caractérisés à l'aide de deux paramètres adimensionnels, les nombres de Peclet (*Pe*) et Damköhler (*Da*) (Damköhler, 1936).

$$Pe = \frac{V_0 . l}{D} \qquad (1)$$

et

$$Da = \frac{\kappa}{V_0} \qquad (2),$$

avec V_0 vitesse du fluide, l longueur de pore, D coefficient de diffusion, κ réactivité de la solution en mol L^{-1} s^{-1}.

A géométrie et fluide constant, le nombre de Peclet est principalement régi par la vitesse du fluide. En revanche, le nombre de Damköhler est une combinaison de la réactivité du fluide et de sa vitesse. Pour s'affranchir de la vitesse du fluide dans l'expression de ce nombre sans dimension, on utilise également le produit Peclet-Damköhler, nombre sans dimension permettant de comparer les phénomènes de réaction et de diffusion.

$$PeDa = \frac{\kappa . l}{D} \qquad (3)$$

Il est à noter que la surface réactive qui influence aussi la dissolution (Noiriel *et al*., 2009) est comprise dans le terme réactif k.

En traçant *Pe* en fonction de *PeDa*, on obtient les trois domaines de dissolution en fonction de la vitesse et de la réactivité du fluide (Figure 3). Notons que l'obtention d'une dissolution homogène de l'échantillon n'existe que pour un *PeDa* tendant vers zéro. Cette condition est quasiment impossible à reproduire expérimentalement, mais elle est cependant nécessaire à l'obtention d'échantillons homogènes et reproductibles pour les études géomécaniques.

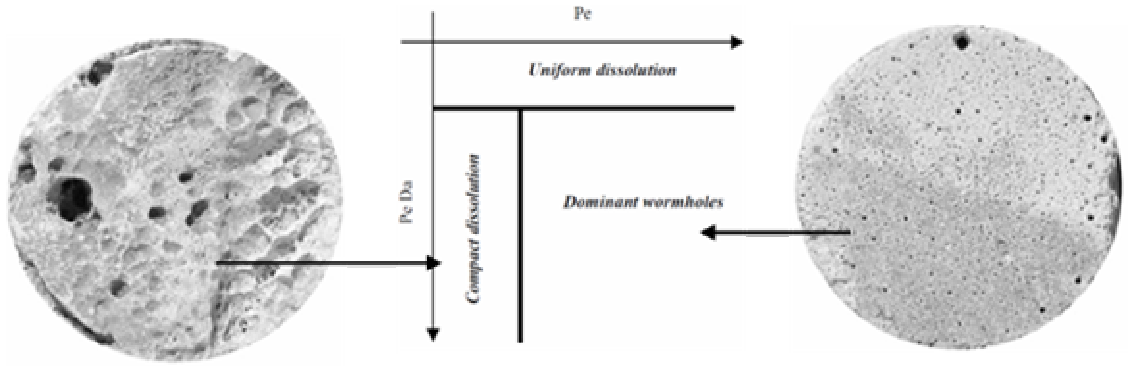


Figure 3 : Régime de dissolution en fonction du nombre de Peclet et de Damköhler d'après Egermann *et al* (2006) et figures d'altération correspondante obtenues sur le calcaire de Lavoux (Bazin, 2001)

Il est également à noter que la microstructure et la minéralogie de la roche jouent un rôle clé dans le développement de figures d'altération hétérogène. Une hétérogénéité locale de perméabilité peut favoriser le développement d'une altération compacte (barrière à l'écoulement) ou de type wormhole (drain pour l'écoulement) (Izgec *et al.*, 2008).

Une fois ces trois régimes d'écoulement et leur réactivité établis, des protocoles d'altération des carbonates ont été développés afin d'évaluer l'impact de ces altérations sur les capacités d'écoulement des roches ainsi que leur microstructure. Nous allons donner ci-dessous une liste non exhaustive mais représentative des principales approches possibles :

-injection de solutions saturées en CO_2 ou co-injection de saumure et de CO_2;

-injection d'un acide à activation retardée permettant d'assurer l'homogénéité du profil d'altération le long d'un échantillon.

Différentes expériences ont été menées pour simuler une altération par injection de saumure concentrée en CO_2 dans des échantillons de roches carbonatées et gréseuses. Nous pouvons distinguer les expériences avec écoulement et les expériences statiques pour lesquelles l'échantillon est saturé par une solution réactive.

- a) Le protocole de Noiriel *et al.*, (2005) (Figure 4.a) consiste à injecter en continu une saumure saturée en CO_2 de pH compris entre 4,5 et 3,8 à un débit donné (100 à 300 mL/h). Le dispositif est couplé à une analyse chimique des effluents (quantification des ions Ca^{2+} en sortie). Les échantillons ainsi altérés sont ensuite imagés par microtomographie RX, ce qui permet d'estimer le gain de porosité et d'imager l'impact de l'altération sur la microstructure. Une limitation de cette approche réside dans la faible pression imposée sur le fluide réactif (0,14 MPa). A ces faibles pressions, le maintien sous forme dissoute du CO_2 n'est pas assuré, ce qui pourrait entraîner des hétérogénéités dans le processus d'altération par la présence de bulles de gaz limitant l'interaction fluide-roche.
- b) Le Guen *et al*., (2007) ont étudié la réponse mécanique de calcaires et d'un grès soumis à une contrainte triaxiale constante et à une altération continue par percolation d'une solution saturée en CO_2 (Figure 4.b). Comme pour le protocole de Noiriel *et al.*, (2005), les conditions hydrodynamiques sont représentatives de la zone proche puits. Pour les trois roches étudiées (calcaire d'Estaillades, calcaire de Lavoux et grés de Villefranche-sur-Cher), les contraintes effectives sont respectivement fixées à 3 MPa, 8,4 MPa et 7,7 MPa, pour des valeurs de pression de confinement σ_3 représentatives de réservoirs peu enfouis (7 MPa< σ_3 <12 MPa). Bien que les conditions triaxiales soient proches des conditions *in-situ*, l'écoulement continu de saumure sursaturée en CO_2 favorise une altération hétérogène et localisée dans les chemins d'écoulement préférentiels. D'un point de vue de l'analyse mécanique, l'échantillon altéré est très hétérogène et ne constitue plus un Volume Elementaire Représentatif du matériau d'étude (VER).
- c) Le protocole présenté dans la Figure 4.c a été élaboré par Egermann *et al.*, (2006). Le principe repose sur l'utilisation d'un acide activé thermiquement; l'acide est injecté à froid afin de saturer l'échantillon sans risque de réaction qui pourrait entraîner une altération hétérogène. La montée en température va activer l'acide qui agira alors sans mouvement de fluide au sein de la porosité. Cette méthode a été développée afin d'obtenir des profils d'altération homogènes avec une augmentation de la porosité importante dans un temps d'expérimentation faible. Ces essais permettent donc de simuler une altération sur le long terme dans la zone éloignée du puits favorable à la dissolution du CO_2 dans la saumure. Ce protocole a été repris par Bemer et Lombard

(2010) et Nguyen *et al*., (2011) afin d'identifier l'évolution de la réponse mécanique de roches carbonatées à différents niveaux d'altération homogène. La méthode permet également de mesurer la perméabilité après chaque cycle d'altération.

- d) Le protocole mis en place par Sterpenich *et al.*, (2009) (Figure 4.d) est basé sur l'utilisation d'une saumure réactive sans mise en écoulement. Les échantillons de calcaire de Lavoux sont immergés dans une solution aqueuse et placés dans un réacteur maintenu à pression partielle de CO_2 (P_{CO2}) constante. Cette pression permet d'assurer la saturation de la saumure en CO_2 et de maintenir un équilibre réactionnel tout au long de l'expérience d'une durée d'un mois. Cette méthode présente l'avantage d'être au plus près des conditions chimiques de réservoir (pH, température) et permet de simuler les différents processus réactionnels attendus en fonction de la distance aux puits (fonction de la saturation à l'état initial et possibilité de déshydratation de l'échantillon après passage de CO_2). Les volumes dissous restent faibles et ne peuvent rendre compte des évolutions de la microstructure aux échelles de temps d'un stockage de CO_2.

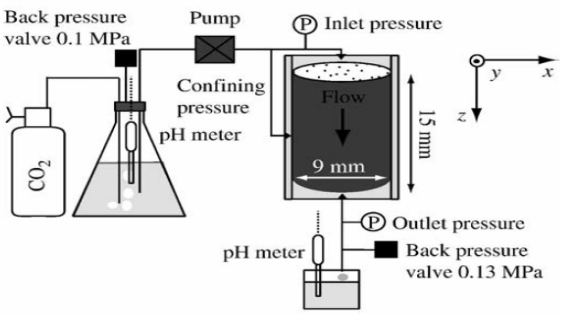
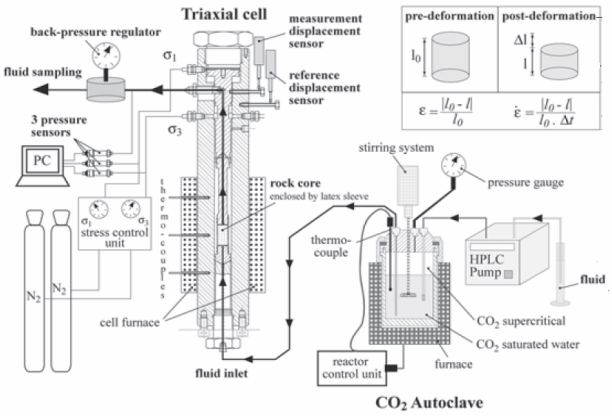
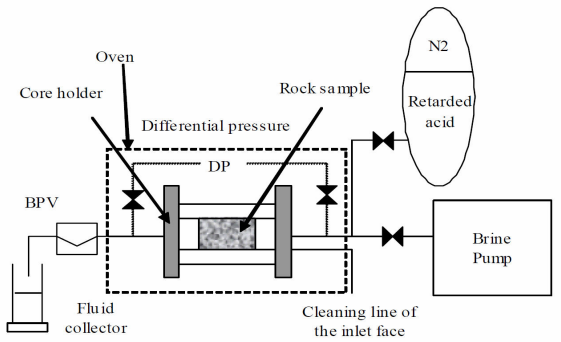
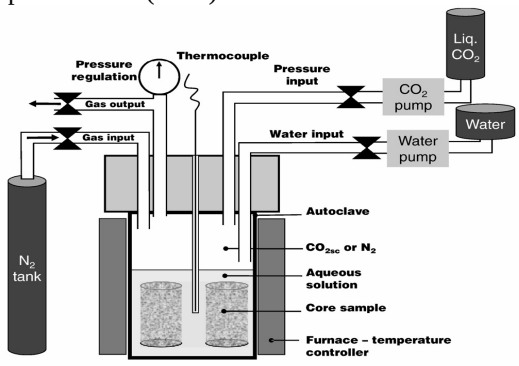
Schéma du dispositif	Avantages	Inconvénients
Noiriel *et al.* (2005)  **a**	-Altération sur des échantillons de petites dimensions -Altération rapide au CO_2 -Mesures chimiques des effluents	-Altération dynamique -Pression de confinement faible -Analyses mécaniques avant/après
Le Guen *et al.* (2007)  **b**	-Mesure triaxiale pendant l'altération	-Altération dynamique -Pas de suivi microstructural
Egermann *et al.* (2006)  **c**	-Altération rapide -Altération statique -Mesures sur les effluents -Mesure de perméabilité *in situ*	-Analyses mécaniques avant/après **-Ecoulement unidirectionnel**
Sterpenich *et al.* (2009)  **d**	-P_{CO2} constante -CO_2 injecté sous différentes formes -Altération statique	-Temps d'altération longs -Analyses mécaniques avant/après

Figure 4: Présentation des différents protocoles d'altération

I.1-C)Effet de l'altération sur les propriétés d'écoulement des roches et leur microstructure

I.1-C-a) Impact sur les réseaux poreux

Nous allons ici résumer les résultats obtenus par les différents protocoles cités précédemment, en termes d'évolutions de porosité, de perméabilité et de propriétés mécaniques.

Les mesures de perméabilité effectuées par Noiriel *et al.*, (2005) sur de petits échantillons de calcaire de Lérouville montrent une augmentation très forte avec l'altération allant de 40 mD à une valeur supérieure à 5000 mD. Cette augmentation de deux ordres de grandeur de la perméabilité est signe d'une altération hétérogène de type wormhole, résultant du lissage des parois des pores lors du passage du fluide. La Figure 5 présente un profil de porosité issu du seuillage des images obtenues par le µ-scanner. On observe que ce profil n'est pas homogène car la variation de porosité n'est pas constante le long de l'échantillon. En effet, celle-ci est de 9 % en entrée de l'échantillon et de 6 % avec un maximum de l'ordre de 10% en sortie entre l'état initial et après 22h d'expérience.

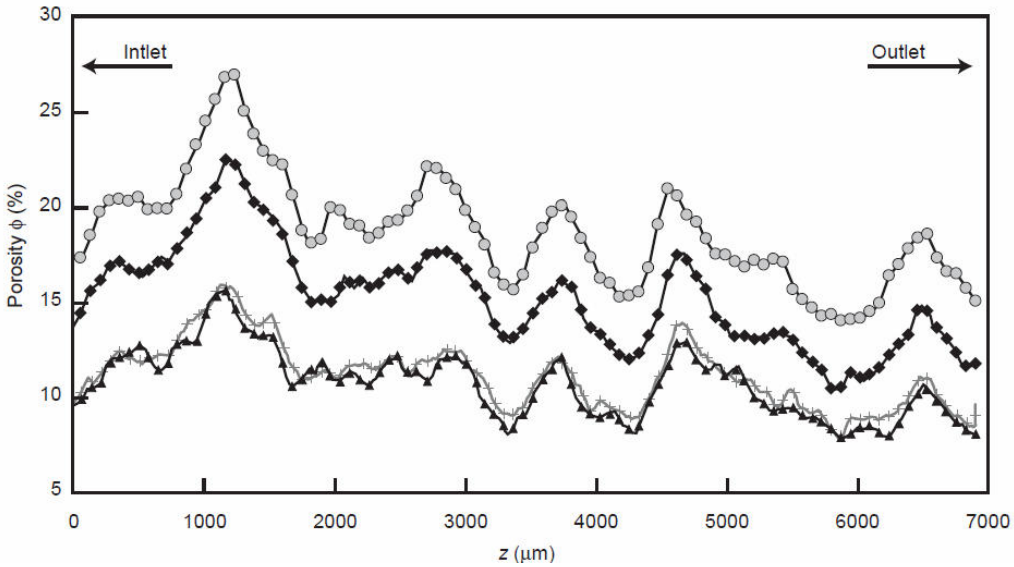


Figure 5 : Profils de porosité obtenus par µ-scanner de l'échantillon après 1h24, 13h54 et 22h24 d'expérience, z est la position de la coupe suivant l'axe de l'échantillon. (D'après Noiriel et al., 2005)

Le protocole utilisé par Sterpenich *et al.*, (2009) ne permet pas de mesures de perméabilité en fonction du niveau d'altération. Cependant, les auteurs supposent qu'un lissage des parois de grains peut provoquer un mécanisme d'augmentation de la perméabilité comme observé par Noiriel *et al.*, (2009). Les résultats de Noiriel *et al.*, (2009) étant issus d'une altération

dynamique, il n'est pas certain que ceux-ci soient directement applicables à l'altération statique menée par Sterpenich *et al*., (2009). De plus, le gain en porosité sur les échantillons présentés, est très faible (1,5% de la fraction connectée soit moins de 1 % de la porosité totale), ce qui implique que l'évolution des surfaces réactionnelles n'est pas comparable.

Bemer et Lombard (2010), Radilla *et al*., (2010) et Nguyen *et al.*, (2011) ont étudié l'impact d'une altération homogène sur la porosité et la perméabilité de la roche selon le protocole établi par Egermann *et al.*, (2006). A titre d'exemple un profil d'évolution de porosité hétérogène est donné Figure 6.a. Les études utilisant l'acide retard ont montré des profils de porosité scanner homogènes (Figure 6.b), avec une augmentation de porosité équivalente pour chaque cycle d'altération. Cependant, cette prise de porosité n'est pas forcément associée à une forte augmentation de la perméabilité. Les variations de perméabilité observées par Nguyen *et al.*, (2011) sur le calcaire d'Euville de perméabilité initiale de 103 à 150 mD pour une porosité moyenne de 17 % montrent que pour trois cycles d'altération la perméabilité augmente de 1 à 10 % et pour six cycles d'altération la perméabilité augmente de 40 à 100 %. Ces résultats dont comparables à ceux d'Egermann *et al*., (2006) obtenus avec des calcaires plus poreux (24 et 28 %). Avec ce protocole, il n'existe donc pas de relation claire entre la prise de porosité liée à l'altération et le gain de perméabilité.

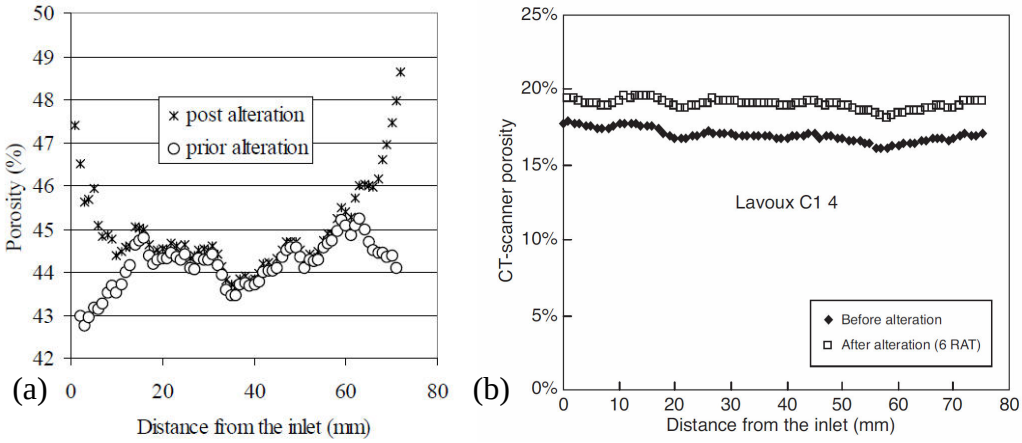


Figure 6 : Évolution du profil de porosité scanner dans le cas a) d'une altération de type co-injection saumure CO_2 (Egermann et al. 2006) et b) d'une altération à l'acide retard sur le calcaire de Lavoux (Bemer et Lombard, 2010)

Egermann *et al.*, (2006) et Noiriel *et al.*, (2005) évoquent un effet possible de détachement et de remobilisation de particules fines sous l'effet d'une mise en écoulement. Les phénomènes d'arrachements à la surface des grains étant plus importants dans le cas d'un écoulement continu de fluide réactif, la quantité de particules fines aurait une influence plus forte sur la

perméabilité, celles-ci pouvant boucher les seuils d'accès aux pores. Noiriel *et al.*, (2005) expliquent les fluctuations de perméabilité observées à débit et saturation donnés par ces cycles d'arrachement et de dissolution de particules. Ce phénomène rencontré dans le domaine pétrolier est appelé 'clogging' et a été étudié (Valdes *et al.*, 2006).

I.1-C-b) Impact sur la microstructure

Noiriel *et al.*, (2005) ainsi que Le Guen *et al.*, (2007) ont respectivement associé leurs expériences à des observations par rayons X au micro tomographe et au scanner médical, avant et après acidification de leurs roches. Comme le montrent la Figure 6.a et la Figure 7 ces deux altérations ont entraîné des figures hétérogènes pour les carbonates. Les travaux de Le Guen *et al.*, (2007) ont porté sur des carbonates (Lavoux et Estaillades) et un grès arkosique du centre de la France. La Figure 7.a montre une dissolution préférentielle de l'échantillon d'Estaillades dans les faces d'entrée et de sortie du fluide couplé au développement d'un réseau de canaux de type wormhole dans l'échantillon. Cette observation est confirmée par le profil de porosité présenté dans la Figure 7.b qui montre des maximum de porosité aux extrémités de l'échantillon.

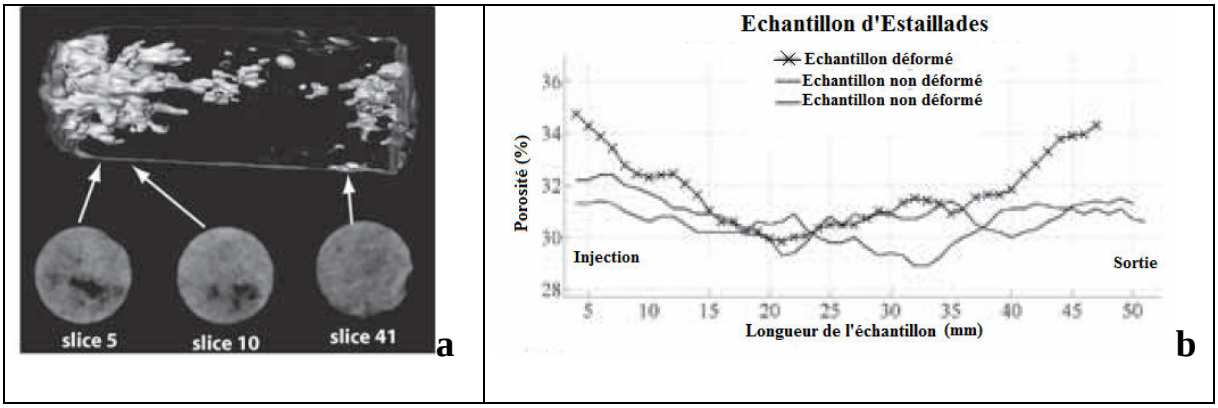


Figure 7 : (a) Exemple de figure d'altération hétérogène obtenue par injection dynamique de fluide réactif dans un carbonate d'Estaillades et (b) profils correspondants à différents niveaux d'altération, d'après Le Guen et al. (2007).

Le calcul de la porosité et de la perte de rugosité des parois des pores par seuillage (Noiriel *et al.*, 2005) montre que l'altération est localisée dans les chemins préférentiels d'écoulement, mais aussi qu'il y a une ouverture de nouveaux seuils de pores (Figure 8).

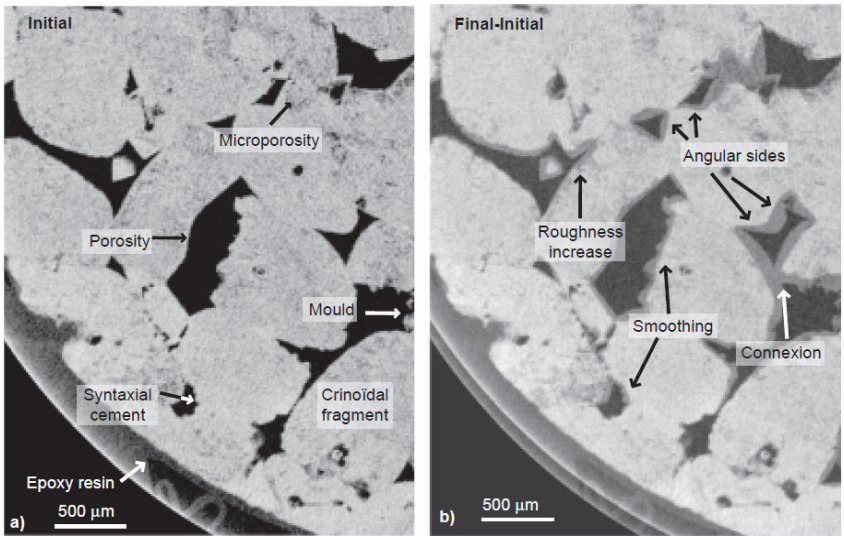


Figure 8 : a)Echantillon sain d'Estaillades b) Différence entre l'état altéré et sain permettant la localisation des zones altérées par seuillage. (Noiriel et al, 2005)

L'observation au microscope électronique à balayage (MEB) menée par Sterpenich *et al.*, (2009) descend à une échelle d'investigation plus fine. Les auteurs décrivent une augmentation de la rugosité des ciments calcitiques au contact du fluide sous la forme de 'corrosion pits' (Figure 9.a et b). Au contraire, les grains constitutifs des oolithes du calcaire de Lavoux, ne présentent pas de changement de forme car ils sont moins exposés au fluide réactif (Figure 9.c). Cependant, les faibles niveaux d'altération obtenus par ce protocole limitent l'interprétation des figures de dissolution.

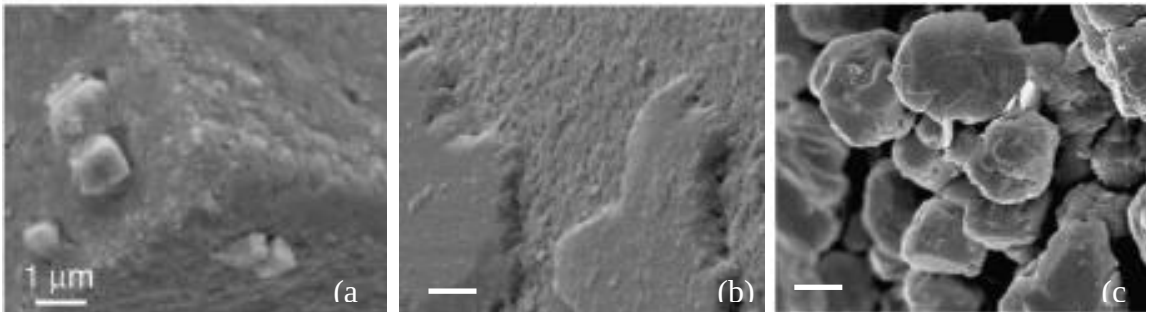


Figure 9 : (a) Visualisation de la rugosité des cristaux après altération (b) détail de cette rugosité (c) détail de la micrite d'après (Sterpenich et al. (2009)

I.2- Comportement mécanique des roches poreuses sous contraintes

I.2-A) L'étude des grès et leurs régimes de rupture

La majorité des études mécaniques menées sur des géo-matériaux durant les quarante dernières années ont été réalisées sur des grès. Ces études ont eu plusieurs objectifs :

-la détermination des comportements mécaniques à différents états de contraintes,

-la détermination des mécanismes à l'échelle microstructurale conduisant à la rupture,

-l'évolution des propriétés d'écoulements avec l'augmentation des contraintes dans le cadre d'études sur les réservoirs pétroliers.

L'approche utilisée pour étudier les propriétés mécaniques d'une roche poreuse est principalement de sélectionner une roche pour son homogénéité microstructurale puis réaliser des essais mécaniques sous presse dans différentes conditions de pression de confinement, pression de pores et chargement axial. Les chemins de chargement suivis peuvent êtres :

- triaxiaux, $\sigma_1 \neq \sigma_2 = \sigma_3$ où σ correspond à la pression et l'indice correspond à la position dans le tenseur des contraintes.

- uniaxiaux, $\sigma_2 = \sigma_3 = P_{ambiante}$. Dans ce cas, on a un essai à pression de confinement « nulle »

- hydrostatiques $\sigma_1 = \sigma_2 = \sigma_3$.

Des études systématiques ont mené à la description de trois régimes de rupture pour des grès. Ces régimes se caractérisent par la façon dont l'échantillon se comporte à la rupture. A titre d'exemple, ces différents régimes sont représentés Figure 11 pour le grès de Berea (Zhu et Wong,. 1997a). On observe ainsi pour des pressions de confinement allant de 5 à 40 MPa une rupture de pente nette à la rupture de l'échantillon, caractéristique d'une rupture en domaine fragile. A 160 MPa de pression de confinement on n'observe plus ce maximum de contrainte et la pression différentielle reste la même pendant que l'échantillon continue à se compacter, on a ici un régime transitionnel de rupture. Enfin, à 250 MPa, après la rupture de l'échantillon la pression différentielle augmente avec la déformation axiale, on a ici un comportement ductile à la rupture.

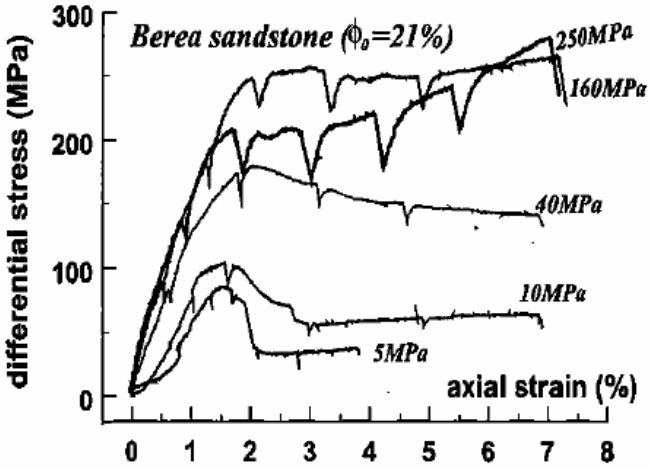


Figure 10 : Evolution de la rupture du grès de Berea avec une augmentation du confinement d'après Zhu et Wong (1997a)

A partir de l'estimation des contraintes à la rupture pour différents confinements, il est possible de décrire dans l'espace des contraintes P'-Q l'enveloppe de rupture (Figure 11) du matériau étudié (Wong *et al*., 1997; Dautriat, 2009). P' est la pression moyenne effective et Q est la contrainte déviatorique :

$$P' = \frac{\sigma_a + 2.\sigma_r}{3} - b.P_p \text{ et } Q = \sigma_a - \sigma_r$$

Avec b le coefficient de Biot, Pp la pression de pore, σ_a la contrainte axiale et σ_r la contrainte radiale. La rupture des roches est contrôlée par la contrainte effective de Terzaghi (Boutéca et Guéguen, 1999) pour laquelle b = 1.

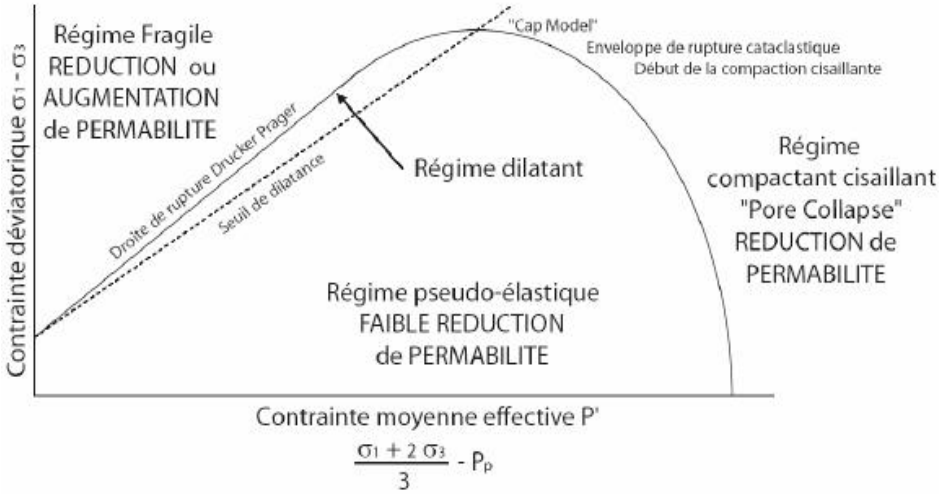


Figure 11 : enveloppe de rupture présentant la limite fragile, la phase de transition et le comportement compactant-cisaillant. D'après Dautriat (2009)

Ces études ont été menées à une échelle macroscopique puisqu'elles ont été réalisées sur des échantillons cylindriques de taille pluri centimétrique (généralement 4 cm x 8 cm). Une analyse des surfaces des échantillons en sortie de cellule permet l'identification de processus structuraux d'accommodation des déformations. Ces différents états *post-mortem* ont été bien décrits dans la littérature (Fortin *et al.*, 2005). On remarque dans la Figure 12 l'aspect des bandes de cisaillement, uniques pour chaque échantillon, apparues à faible confinement (12 et 30 MPa), puis l'apparition de bandes dites de compaction à plus fort confinement (50 à 90 MPa) perpendiculairement à la direction de chargement axial. La Figure 12 présente donc la transition d'une rupture par fracture nette et unique (régime fragile) à un régime de bandes de compaction multiples (régime compactant).

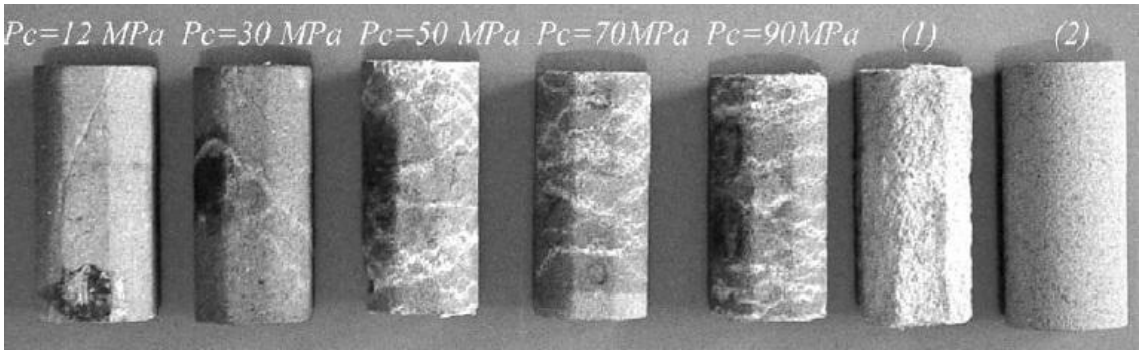


Figure 12 Évolution des types de rupture à l'échelle macroscopique sur un grès de Bleurswiller d'après Fortin et al., 2005.

Ces différentes accommodations de la déformation à la rupture ont ensuite été investigués à l'échelle microstructurale pour mieux comprendre ces différences de mécanismes d'accommodation et de rupture (Wong et Baud, 2012). La réalisation de lames minces après imprégnation à la résine permet l'observation au microscope électronique à balayage du réseau poreux.

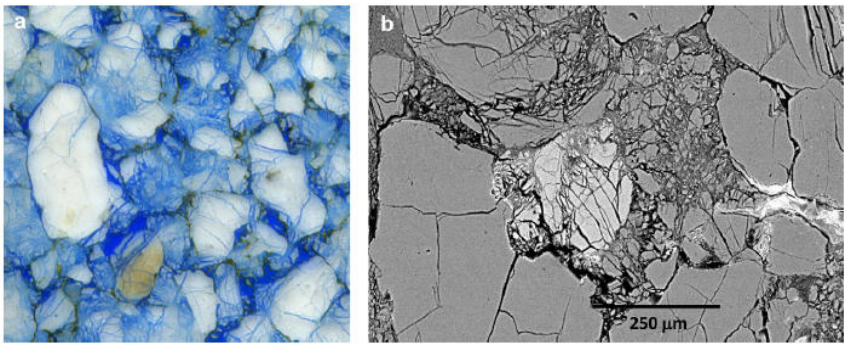


Figure 13 : Broyage de grain et fracture Hertziennes dans un grès de Darley d'après Wong., et al (2012) en microscopie optique et au microscope optique à balayage.

Ces études dans les grès ont montré plusieurs figures caractéristiques. Dans le régime de rupture fragile les bandes de cisaillement se traduisent par de l'ouverture de porosité dans ces bandes de quelques centaines de microns d'épaisseur. Dès que l'on passe dans un régime plus compactant, on observe dans les bandes de compaction des microfractures dans les grains de quartz appelées "fractures Hertziennes" (Figure 13.a). Ces microfractures sont associées à un bouchage de la porosité induit par le broyage des grains moins rigides que le quartz et la compaction (Figure 13.b).

I.2-B)Applications aux carbonates

Le cas des carbonates est plus complexe. Les essais menés en laboratoire ont montré que les carbonates présentent des réponses mécaniques similaires avec l'augmentation de la pression de confinement comme le montre la Figure 14 issue de Vajdova *et al*., (2004). Une transition d'un domaine fragile de rupture à un domaine ductile de rupture est observée avec l'augmentation de la pression de confinement. On remarque par ailleurs que le régime de transition survient à une pression de confinement inférieure (50 MPa) à ce qui est observé dans le grès de Berea par exemple bien que le carbonate de Tavel présente une porosité inférieure (10.4% pour le calcaire de Tavel contre 21% pour le grès de Berea). Les enveloppes de rupture sont similaires (Baud et Wong, 2012), seuls les niveaux de rupture sont différents *i.e* plus bas car la calcite est moins résistante que le quartz. Mais l'observation microstructurale des carbonates après rupture montre une accommodation des déformations différente.

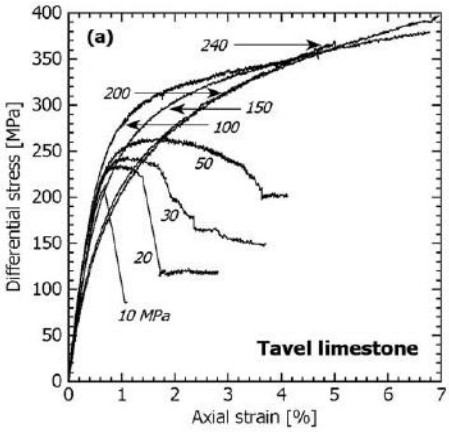


Figure 14 : Courbe de chargement d'un carbonate de Tavel en fonction de la pression de confinement, d'après Vajdova et al., 2004

A l'échelle pluri métrique des bandes de compactions sont observées (Cilona *et al*., 2012) et l'étude de lames minces dans ces bandes montre des microstructures similaires à ce qui est

observé en laboratoire (et à grande échelle) dans des formations gréseuses. Cependant, lors des études en laboratoires menées sur des carbonates, aucune bande -hormis les bandes de cisaillement- n'est visible après la rupture des échantillons dans les régimes de rupture compactants et ductiles mais le raccourcissement des échantillons est cependant noté.

Des études récentes menées sur "l'Indiana limestone" et "l'Alban Hills tuff" (Vajdova *et al*., 2012 et Zhu *et al*., 2011 respectivement) montrent l'existence d'effondrement de pores (Figure 15 a,b), de fractures Hertziennes (Figure 15 c) ainsi que de broyage de grains dans des carbonates (Figure 15 d). Ces études montrent par ailleurs l'apparition de clivage dans les ciments calcitique pouvant expliquer le comportement plastique du matériau. Cependant, bien que semblant situés dans des zones plus denses, la localisation des ces microstructures en bande de compaction n'est pas clairement mise en évidence dans ces publications mais prouvent que les mécanismes mis en jeu dans les carbonates sembles proches mais non identiques aux grès.

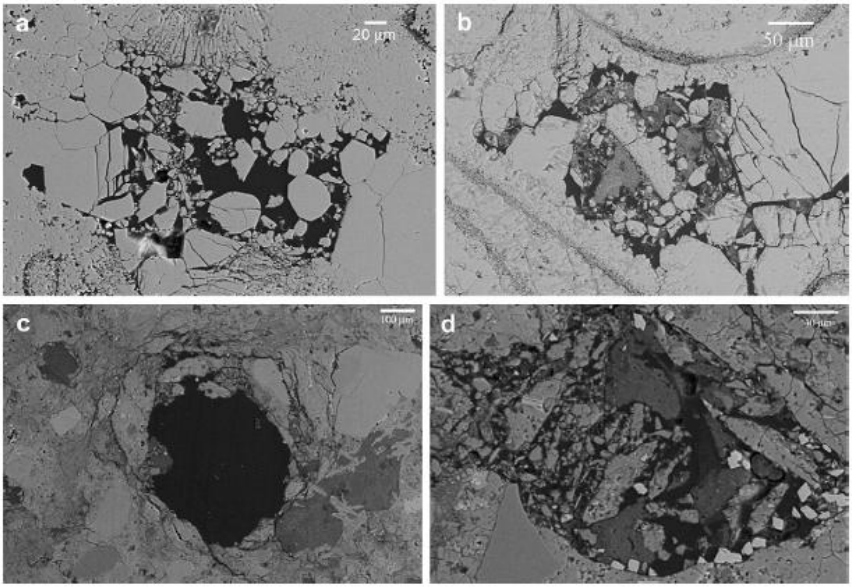


Figure 15 : Exemple de broyage de grains et de fracturations Hertziennes dans des carbonates d'après Vajdova et., al (2012) et Zhu et al., (2011).

Dans le cadre de la thèse, nous allons chercher à déterminer si ces observations microstructurales peuvent êtres associées à des localisations comparables à ce qui a été observé dans des grès. On cherchera à l'aide d'imagerie volumique microtomographique, couplée à de la corrélation d'images, à mettre en évidence l'existence de bandes de localisations associées à des événements microstructuraux comparables à ceux qui viennent d'être décrits.

I.2-C) Altération et effet sur le comportement mécanique

Les études décrites précédemment ont été menées sur des grès et des carbonates non altérés chimiquement. D'autres études ont porté sur l'évolution des modules élastiques suite à une altération chimique et se sont attachées à comparer cette évolution à celle en lien avec la porosité naturelle des carbonates. Nous allons ici décrire principalement les études menées à l'aide du protocole d'altération homogène que nous avons utilisé dans cette thèse. L'utilisation de ce protocole est importante car elle assure de ne pas induire d'hétérogénéité macroscopique aux échantillons utilisés pour les essais mécaniques qui pourraient induire des comportements non représentatifs de la roche.

Les études réalisées par Bemer *et al.*, (2004), Egermann *et al.*,(2006), Bemer et Lombard (2010) se sont intéressées à deux paramètres élastiques : le module de compressibilité drainé (noté K_0) et le module de cisaillement (noté G) issus de mesures de vitesses d'ondes P et S mais aussi d'essais triaxiaux classiques. Ces résultats sont comparés aux études similaires conduites sur des carbonates de différentes porosités (Gourri, 1991; Weger *et al*., 2009; Anselmetti et Eberli., 1993) mais non altérés. A l'état sain, les carbonates étudiés par Egermann *et al.*, (2006) suivent la tendance du modèle associés aux carbonates développés par Bemer *et al.*, (2004) (Figure 16). Ce modèle est basé sur la théorie d'Hashin et Shtrikman (1963) qui donne les bornes inférieures et supérieures de l'évolution du module d'incompressibilité (K_0) et de cisaillement (G) pour un matériau composite à n-phases. Ces bornes correspondent aux modules exacts pour deux matériaux modèles définis par un ensemble de sphères composé de deux phases. Si l'on applique directement cette loi à un matériel poreux, la borne inférieure devient nulle car l'air de la porosité ne possède pas de valeur de rigidité. Pour contourner ce problème et appliquer cette loi à un matériau poreux, un modèle à double niveau est appliqué (Boutéca, 1992), on peut alors obtenir une évolution moyenne des modules élastiques pour un calcaire en fonction de sa porosité.

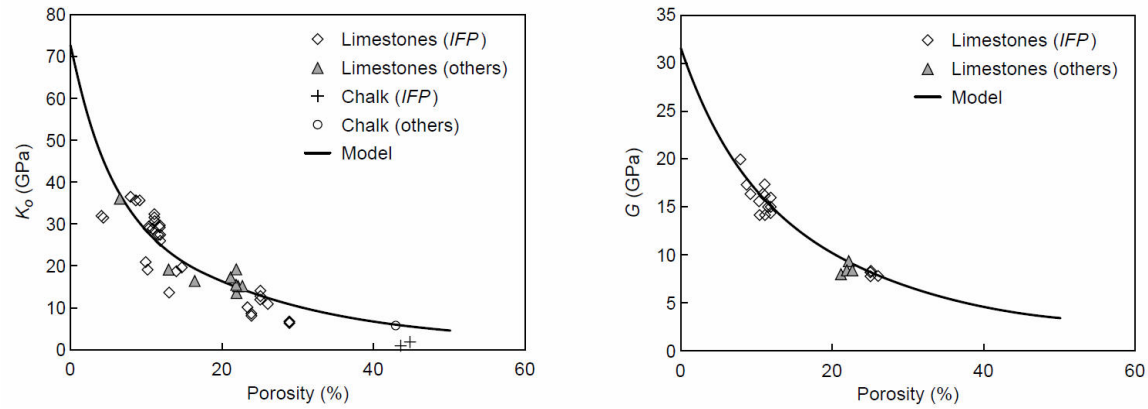


Figure 16 : Evolution des modules élastiques K_0 et G en fonction de la porosité. D'après Bemer et al. (2004)

Connaissant la valeur de la porosité des échantillons après l'altération homogène, il est possible de représenter dans le même diagramme les nouveaux modules correspondant à ceux de la roche altérée. Dans la Figure 17 on observe dans un premier temps que les modules (triangles noirs) diminuent avec l'altération. Dans un second temps on observe que les modules mesurés ne suivent plus le modèle phénoménologique reliant les modules à la porosité (Figure 17, triangle noir). Si l'augmentation de la porosité ne peut expliquer à elle seule l'abaissement des modules, les auteurs proposent une origine microstructurale liée à l'altération des ciments.

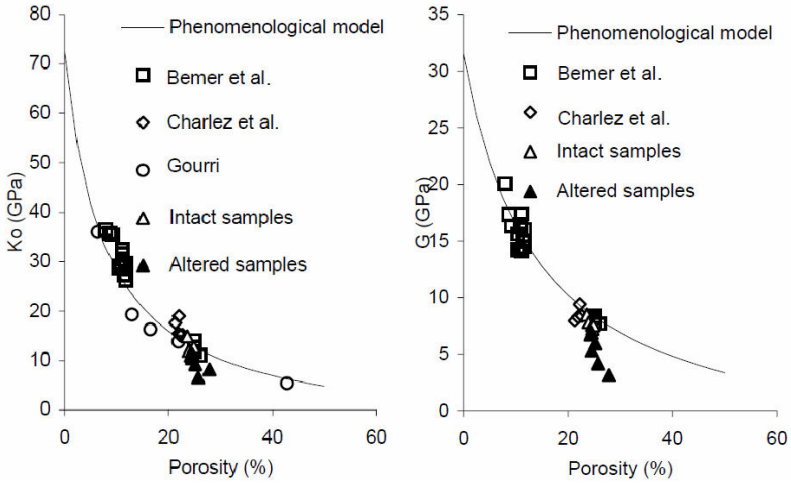


Figure 17 : Evolution des modules élastiques d'échantillons altérés. D'après Egermann et al. 2006.

Les essais triaxiaux menés par Bemer et Lombard (2010) montrent une diminution des niveaux de rupture avec l'altération pour les carbonates de Comblanchian et Lavoux (Figure 18). L'augmentation de la porosité induite par l'altération des matériaux n'entraîne pas de changement de régime d'endommagement aux pressions de confinement investiguées par ces auteurs. Ils précisent cependant qu'il est nécessaire de réévaluer la position et la pente de la

droite définissant la limite du régime fragile (critère de Drucker-Prager) pour le matériel altéré qui a une porosité plus importante.

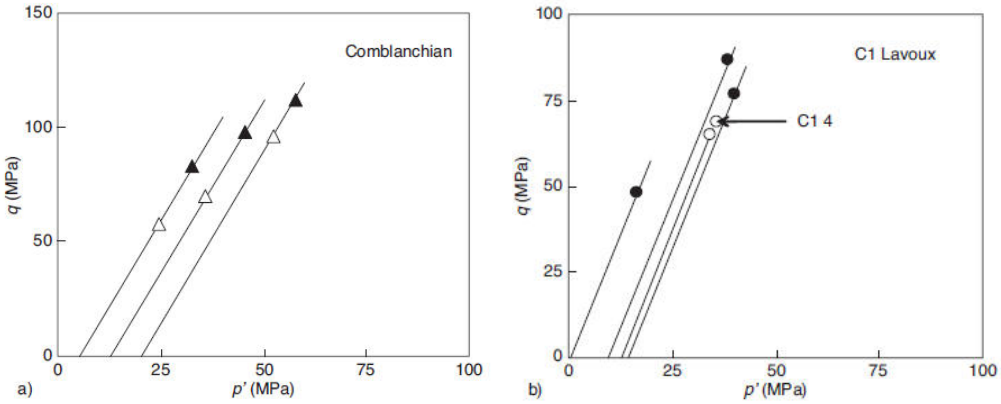


Figure 18 : Comparaison des seuils de rupture pour des carbonates sains (triangles noirs) et altérés (triangles blancs) projetés dans le diagramme pression effective/déviateur. (Bemer et Lombard, 2010).

Le Guen (2006) mesure l'évolution de la déformation axiale d'un carbonate de Lavoux soumis à un déviateur constant et à un flux de saumure saturée en CO_2 (Figure 19). Dans un premier temps, lors de la saturation de l'échantillon, on observe une rapide augmentation de la déformation axiale. Selon l'auteur, cette déformation rapide serait due à un mécanisme de lubrification et de réarrangement partiel des grains par le fluide saturant et non à un effet d'altération, car ce phénomène est également observé sur le grès. Sous l'effet de l'injection, les matériaux carbonatés utilisés montrent une évolution régulière de la déformation axiale à quantité constante de CO_2 dissous dans la saumure, i.e. à pH constant, et pour un même débit, i.e. à une même réactivité. Plus la concentration en CO_2 est forte, plus l'altération et la compaction induite par l'augmentation de porosité sont importantes. De même, l'augmentation du débit d'injection induit une plus forte réactivité et donc une altération plus importante. Ceci se traduit par les ruptures de pente sur les courbes de déformation en fonction du temps lors des changements de fluides et de condition d'injection. Cependant, une limite de cette approche résulte de la génération de figures de dissolution hétérogènes qui tendent à localiser préférentiellement la déformation dans ces zones et rendent difficile la détermination de paramètres mécaniques à l'échelle de la carotte.

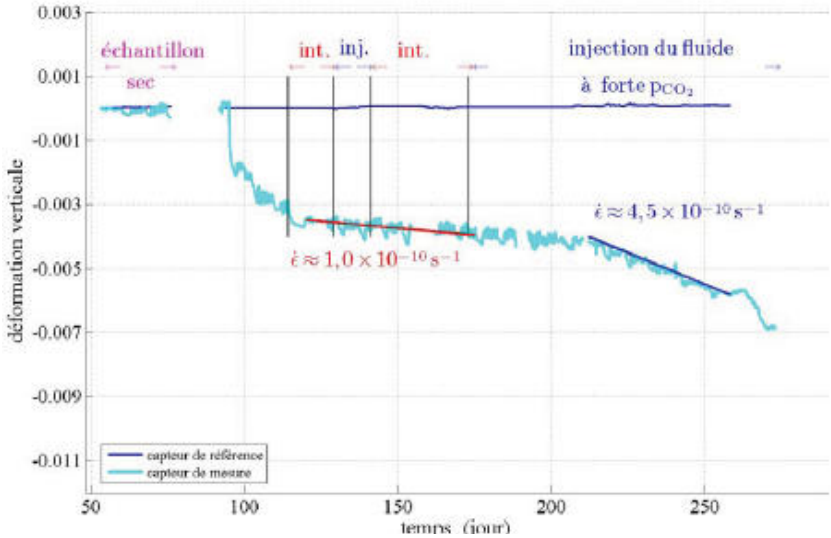


Figure 19 : Evolution de la déformation verticale pour un échantillon à contrainte déviatorique constante soumis à un flux continu de saumure saturée en CO_2 (D'après Le Guen, 2006)

I.3- L'utilisation de la Corrélation d'images Numérique comme moyen d'identification des micromécanismes impliqués dans le comportement mécanique des matériaux

I.3-A) Développement de la CIN

Comme l'a montré la partie dédiée aux descriptions de la microstructure dans les bandes d'accommodation de la déformation, la plupart des observations sont faites après la rupture. Cette forte limitation peut être contournée par l'utilisation de la corrélation d'images numériques (CIN) qui permet de mesurer et localiser les déformations au cours du chargement sur une surface ou un volume imagé pendant le dit chargement.

Cette méthode a commencé à être utilisée dans les années 1980 principalement pour l'étude du comportement mécanique des métaux (Chu *et al*., 1985). Le principe général de la corrélation d'images est d'obtenir, par comparaison entre deux images, un champ de déplacement. L'obtention de ce champ de déplacement peut se faire par l'identification de grains et de formes (Andò *et al*., 2012) ou par l'identification d'un pixel à l'aide de l'histogramme des niveaux des gris des pixels voisins (Bornert, 1996). Dans la seconde méthode d'identification, il est donc nécessaire que les histogrammes de niveaux de gris soient suffisamment diversifiés pour permettre une bonne identification du pixel cible. Du fait de cette nécessité, des marqueurs sont ajoutés à la surface des échantillons afin d'améliorer les contrastes locaux.

Classiquement (en deux dimensions) les repères de corrélation à la surface des échantillons étaient de la peinture pour la corrélation d'images optiques ou des grilles d'or d'échelle micrométrique déposées à la surface pour les essais au MEB. Les problèmes de marquage et de contrastes locaux deviennent plus importants avec la micro tomographie aux rayons X. En effet, le contraste de ce type d'image est induit par des changements de densité locaux dans l'échantillon. Dans le cas de roches denses monophasées ou de mono cristaux il est nécessaire de créer des contrastes locaux. Une étude récente menée sur le sel (Bourcier *et al*., 2013) a utilisé des échantillons de sels fabriqués en laboratoire et a montré que l'ajout de 5% de cuivre lors de la fabrication permettait d'obtenir des marqueurs dans le cristal visibles au synchrotron et permettant la corrélation d'images en 3D. Dans notre cas, et nous le développerons dans une partie ultérieure, c'est la différence entre la calcite micro poreuse et la calcite monocristalline qui nous donne un contraste local suffisant.

I.3-B) Application aux matériaux à faibles déformations et aux carbonates

L'application de la corrélation d'images numérique aux géomatériaux et plus particulièrement aux ceux à faible déformation (grès, carbonates, argiles) est peu répandue mais est en plein essor tant les problématiques de stockage (du CO_2, des déchets nucléaires, d'air comprimé, du CH_4...) nécessitent une approche micromécanique pour comprendre le comportement de ces réservoirs ou sites de stockages et élaborer des lois comportementales utiles à la simulation et la gestion de ces sites.

Les premières utilisations connues de l'auteur sur des géomatériaux à faible déformation ont porté sur le carbonate d'Estaillades et le grès de Bentheim (Dautriat *et al.*, 2011b; Charalampidou *et al.*, 2011) ainsi que sur des Argilites du Callovien (Lenoir *et al.*, 2007). Le travail de cette thèse s'inscrivant dans la suite des travaux de Dautriat *et al*., 2011a et b) nous allons décrire les principaux résultats issus de cette étude. Ce travail a porté sur la comparaison des comportements sous contrainte du calcaire d'Estaillades et du grès de Bentheim. L'étude de ces matériaux a nécessité une estimation des erreurs induites par la méthode de corrélation et par les outils d'acquisition d'images pour permettre la discussion autour des faibles déformations observées pour ces matériaux. Les principaux résultats sont :

- Pour la CIN 2D optique, échelle « macroscopique » : une estimation des erreurs aléatoires et systématiques a montré l'importance de l'ajout sur les surfaces des matériaux de gouttelettes de peinture permettant d'avoir des contrastes locaux moins

"durs" (variation rapide des niveaux de gris de l'image à l'échelle des pixels). Cependant, l'étude a montré que lors des essais mécaniques, l'usinage de l'échantillon pour assurer le bon contact entre la presse et les faces inférieure et supérieure de l'échantillon était essentiel pour éviter des artefacts lors de la mesure de la déformation globale induite par des mouvements hors plan ou de tilt des échantillons.

- CIN-2D au MEB, échelle « microscopique ». A cause de l'impossibilité de réaliser un marquage de surface pour les échantillons de calcaire et de grès, l'étude a porté sur l'optimisation des conditions d'acquisition pour améliorer le rapport signal/bruit. La conclusion est qu'il faut un temps de balayage long entre 15 et 30 µs par pixel et une taille de faisceau (spot) grande pour augmenter la quantité d'électrons reçue par la surface mais pas trop importante pour ne pas provoquer d'effet de charge, les tailles de diaphragme (donnant la taille de spot) choisies ont donc été 2 et 4. Ces paramètres optimaux ont été repris dans cette thèse pour le carbonate de Lavoux (balayage de 30 µs et taille de spot de 4 pour un faisceau de 10 à 15 kV). Les erreurs mesurées sur le dispositif MEB (identique à celui de notre travail) ont montré que l'erreur sur le calcul du champ de déplacement est plus importante d'un facteur dix par rapport aux acquisitions optiques.

L'ensemble de ces études a donc permis de montrer l'importance des marquages de surface pour améliorer les contrastes locaux et diminuer les erreurs liées à la méthode de corrélation d'images. L'erreur liée à la méthode sur le calcul du champ de déplacement est faible pour les essais optiques et permet l'application de la CIN aux matériaux à faible déformation. Cependant, des précautions lors des essais et la préparation des échantillons sont à prendre pour éviter les mouvements hors plan des échantillons qui induisent des erreurs fortes lors de l'interprétation du traitement par analyse d'image. L'application de la méthode à l'échelle du MEB est possible mais les erreurs induites par la méthode d'acquisition rendent difficiles l'étude des valeurs locales de déformations, mais aussi l'obtention de modules mécaniques issus des mesures globales de déformation à chaque palier de chargement. Aussi, cette échelle permettra principalement la description des mécanismes locaux de déformation. Ces travaux serviront de base de discussion lors de l'estimation des erreurs dans le cas de cette thèse puisque le matériel d'acquisition est similaire : pour les acquisitions optiques, et identique pour les acquisitions au MEB.

Les travaux sur les grès menés par Charalampidou *et al.*, (2011) cherchent, tout comme pour les travaux de Louis et al., (2007), à appliquer la CIN à des images obtenues par CT-scanner sur un échantillon de grès avant et après essais afin de localiser les déformations qui ont conduit à la rupture. Comme cette méthode ne permet pas une acquisition *in-situ*, la corrélation d'images a été couplée à des mesures d'émissions acoustiques qui permettent la localisation des endommagements pendant l'essai. Cette méthode est particulièrement utilisée pour les grès. Les auteurs ont ainsi pu, à l'aide des localisations d'émissions acoustiques, montrer le développement d'une bande en cisaillement, confirmée par la CIN sur l'échantillon *post mortem*. Cependant la méthode d'émissions acoustiques est peu adaptée aux carbonates qui présentent généralement peu d'émissions acoustiques lors de la rupture.

Ces limitations amènent naturellement à envisager l'application de la CIN à la 3D. Des premiers résultats obtenus sur des matériaux à faible déformation ont été obtenus par Lenoir *et al*., (2007) sur des argilites en utilisant comme imageur 3D un synchrotron en condition de triaxialité. Cette étude n'a pas réalisé l'étude métrologique de la méthode mais a montré l'applicabilité de la corrélation d'images en 3D et a permis la description de localisation de la déformation dans l'échantillon d'argilite testé. Le calcul des déformations à l'aide du logiciel de calcul en éléments finis Cast3M a été la méthode utilisée dans le cadre de notre thèse. Nous tâcherons dans ce travail d'améliorer les contrastes locaux des images acquises à l'aide d'un microtomographe de laboratoire et évaluer les erreurs de la méthode de corrélation en 3D.

II Méthodologie expérimentale et dispositifs expérimentaux

Sommaire

II METHODOLOGIE EXPERIMENTALE ET DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX 45

II.1- SELECTION DES ECHANTILLONS ET DESCRIPTION PETROPHYSIQUE 53

II.1-A) Mesure de la porosité par scanner médical et sélection des échantillons 53

II.1-B) Les mesures de la porosité 55

II.1-B-a) Mesure de la porosité par pesée 55

II.1-B-b) Mesure de porosité par saturation à la saumure 56

II.1-B-c) Mesure de porosité par injection d'Hélium 57

II.1-C) Description du réseau poreux 58

II.1-C-a) Analyse de la forme de la porosité par résonance magnétique du proton 58

II.1-C-b) Analyse de la taille d'entrée de pore par injection de mercure à haute pression 60

II.1-D) Équipement et protocole d'altération 61

II.1-D-a) Dispositif expérimental 61

II.1-D-b) Mesure de perméabilité à la saumure 63

II.1-D-c) Protocole d'altération 64

II.2- ANALYSES MICROSTRUCTURALES 67

II.2-A) Microscope optique et cathodoluminescence 67

II.2-B) Microscope électronique à balayage (MEB) 69

II.2-C) Microtomographe de laboratoire 70

II.3- CARACTERISATION MECANIQUE DU MATERIAU 71

II.3-A) Dispositif et préparation des échantillons 71

II.3-A-a) Description de la presse triaxiale AT40 72

II.3-A-b) Préparation et mise en place de l'échantillon 74

II.3-A-c) Paramètres mesurés dans le cadre de notre étude 75

II.3-B) Protocole de la campagne d'essais 76

II.4- LA METHODE DE CIN 77

II.4-A) Acquisition du champ de déplacement 78

II.4-A-a) Éléments mathématiques d'obtention du champ de déplacement 80

II.4-A-b) Passage à la 3D 82

II.4-B) Obtention de la déformation 83

II.4-B-a) Calcul des déformations en 2D 83

II.4-B-b) Calcul des déformations en 3D 86

II.4-B-c) Sources d'erreurs en CIN 87

II.5- DESCRIPTION DES TROIS DISPOSITIFS D'ACQUISITION D'IMAGES ET LEURS LIMITES 90

II.5-A) Imagerie optique 90

II.5-B) Imagerie au MEB 92

II.5-C) Imagerie à l'aide d'une cellule triaxiale et de la microtomographie 94

Les différentes méthodes d'analyse utilisées dans le cadre de cette thèse visent à déterminer les propriétés pétrophysiques et les caractéristiques structurales de la roche étudiée afin de permettre le développement et le paramétrage de modèles de couplage hydromécanique. Cette détermination repose sur une approche multi-échelle (pluricentimétrique à micrométrique), indispensable pour les roches carbonatées qui présentent différentes échelles d'hétérogénéités. Afin de comprendre l'impact d'une altération chimique sur le comportement hydromécanique de nos matériaux d'étude, cette méthodologie a été appliquée sur des échantillons sains et des échantillons altérés.

L'une des difficultés de l'étude du comportement hydromécanique de roches carbonatées provient de leur hétérogénéité intrinsèque induite, entre autre, par leurs conditions de dépôt et leur histoire diagénétique. Une telle étude nécessite la mise en place d'une campagne de mesure sur un grand nombre d'échantillons qui doivent être représentatifs de la lithologie considérée. Les hétérogénéités sont généralement présentes à toutes les échelles de caractérisation accessibles au laboratoire. A l'échelle de la microstructure, elles sont principalement liées à la nature des grains en présence (microporeux ou denses) et à la répartition des ciments assurant la cohésion entre ces grains. A l'échelle d'un échantillon pluri-centimétrique, les hétérogénéités peuvent se traduire par des fluctuations locales de la porosité ou du degré de cimentation. Ainsi, au sein d'un même bloc de carrière, il est possible d'échantillonner des éprouvettes d'essai présentant des variations de porosité d'une dizaine de pourcents. Lors de cette étude, il est également apparu que lors d'un approvisionnement de blocs par une même carrière (Carrière de la Vienne dans notre cas), la nature même des grains (taille et répartition) et des ciments fluctuait de manière notable entre deux blocs. Cette observation nous conduit à considérer que les matériaux peuvent être de nature différente d'un bloc à un autre pour une même formation lithologique. Nous ferons donc la distinction entre les deux blocs d'où nous prélevons nos échantillons : calcaire de Lavoux à gros grains (LGG) et calcaire de Lavoux à grains fins (LGF). Ce choix sera justifié dans le chapitre suivant.

La présence au sein d'un échantillon d'hétérogénéités centimétriques (ordre de grandeur de l'échantillon) peut induire un biais et le volume de l'échantillon ne serait plus un volume élémentaire représentatif (VER) pour le comportement mécanique moyen de la roche. Par ailleurs, notre étude vise à estimer l'impact à long terme d'une altération chimique homogène (loin du puits d'injection) sur les propriétés pétrophyiques et mécaniques du matériau. Elle doit donc se baser sur la réalisation d'essais de compression sur des échantillons présentant

différents niveaux d'altération globalement homogènes (Egermann *et al.,* 2006 ; Bemer et Lombard, 2010 ; Nguyen, 2012). Il est donc indispensable que l'altération des échantillons ne génère pas de figures de dissolution hétérogène aux échelles centimétrique à millimétrique.

Notre méthodologie expérimentale sera donc guidée en premier lieu par les deux conditions suivantes:

1) Une sélection rigoureuse des échantillons doit être effectuée. Celle-ci se base sur des critères d'homogénéité structurale et de porosités moyennes équivalentes entre les différents échantillons. Cette sélection est possible par l'imagerie systématique au scanner médical des échantillons suite à leur carottage et leur séchage en étuve pendant 48 heures. La méthode d'imagerie par tomographie RX ainsi que la méthode de sélection seront présentées section II.1-A).

2) Une altération homogène des échantillons doit être assurée. Notre méthode d'altération se base ainsi sur le protocole développé par Egermann *et al.,* (2006) Les moyens expérimentaux ainsi que le protocole d'altération suivi feront l'objet de la section II.1-D).

Comme nous l'avons mentionné en préambule de ce chapitre, la description des évolutions de propriétés pétrophysiques et mécaniques du calcaire de Lavoux est basée sur une méthode d'analyse multi échelles à différents niveaux d'altération. Les techniques d'analyses mises en œuvre requièrent des échantillons de différentes tailles. Nous avons ainsi souhaité mettre en place une méthodologie permettant d'aborder en parallèle et de façon optimale:

- les aspects propres aux évolutions de la structure de notre matériau des échelles centimétrique à microscopique,

- la quantification de la prise de porosité et des évolutions du réseau poreux et de leur impact sur la perméabilité du matériau,

- l'incidence de cette prise de porosité sur la réponse mécanique du matériau, par la mise en œuvre d'essais classiques sous sollicitations triaxiales, et par des techniques originales d'imagerie couplées aux méthodes de corrélation d'images. Ces dernières reposent également sur l'utilisation d'échantillons de différentes tailles.

Au début de cette étude, il n'était pas possible de réaliser les altérations directement en cellule triaxiale. Cette dernière n'était en effet pas prévue pour assurer en même temps la circulation de fluides réactifs au sein du réseau poreux et la régulation en température. Cependant, les évolutions récentes apportées au dispositif Haute Pression – Haute Température permettent

désormais l'acidification des échantillons sous conditions de chargement déviatorique. Il est ainsi possible de déterminer les modules élastiques et leurs évolutions avec les cycles d'altération successifs sans sortir l'échantillon de la presse. Un tel protocole n'étant pas réalisable au début de ce travail de thèse, les cycles d'altération sont réalisés dans une cellule dédiée. Après un nombre de cycles d'altération choisi, les échantillons sont réduits aux dimensions requises pour les essais triaxiaux (80 mm de long). Les essais triaxiaux ont pour objectifs de déterminer les paramètres élastiques des échantillons ainsi que leur contrainte à la rupture.

Afin de comprendre les évolutions de propriétés mécaniques avec les différents cycles d'altération, nous avons étudié les évolutions de porosité de nos échantillons. La porosité est un paramètre clé du comportement mécanique d'une roche. La présence de porosité (« vide ») induit des zones de roche de faible densité. Dans le cas de mesures dynamiques des modules élastiques à l'aide des vitesses des ondes acoustiques P et S, ces zones de faible densité vont ralentir les ondes et fournir des modules élastiques plus faibles. Inversement, une cimentation plus importante entraînera une vitesse d'ondes plus grande (Anselmetti et Eberli., 1993 ; Casteleyn *et al.*, 2010 *;* Fortin *et al*., 2005 ; Louis., 2003 ; Vanorio *et al*., 2008*)*. Dans le cas de mesures en compression quasi-statique, la porosité va influencer la compressibilité du matériau, sa résistance à la rupture et son mode de rupture (Baud *et al*,. 2009 ; Bemer et Lombard, 2010 ; Wong et Baud., 2012 ; Nguyen, 2012). Nous nous sommes donc attachés à quantifier de façon exhaustive les variations de porosités liées au cycle d'altération en combinant différentes méthodes. Ces méthodes, décrites dans la section II.1-B), reposent sur l'utilisation d'échantillons de différentes tailles, allant de celle de la carotte utilisée pour les essais mécaniques à des sous échantillons de 15 mm de diamètre. Ces derniers sont collectés au fur et à mesure des cycles d'altération en découpant un disque de 15 mm de long à l'extrémité de l'échantillon altéré.

La conservation des volumes élémentaires représentatifs lors des sous échantillonnages sera également vérifiée grâce à la redondance de nos mesures de porosités aux différentes échelles. Nous avons de plus décrit les caractéristiques du réseau poreux et leur évolution avec l'altération à l'aide de deux méthodes. La première méthode est la résonance magnétique nucléaire du proton (section II.1-C-a)). Elle nous permet de définir le type de porosité en présence dans notre roche, sa taille moyenne et son évolution avec l'altération. La seconde est la méthode d'injection de mercure à haute pression (section II.1-C-b)), qui nous permet d'accéder à la taille moyenne et à la distribution des seuils d'entrée de pores. Ces deux

méthodes sont réalisées dans cet ordre sur un même sous échantillon, la porosimétrie mercure étant destructive. Ces deux méthodes permettent par ailleurs d'obtenir une estimation directe de la porosité que nous comparerons aux valeurs obtenues sur les échantillons de plus grande taille. Enfin, la porosimétrie mercure permet une estimation de la perméabilité de notre sous échantillon à partir de la forme de la courbe de pression capillaire de mercure.

L'impact de l'altération sur l'écoulement au sein de notre roche a également été évalué par la mesure de la perméabilité à la saumure (II.1-D-b)). Cette mesure de la perméabilité est effectuée au sein de la cellule dédiée aux altérations et peut être mise en œuvre à l'état intact ainsi qu'après chaque cycle d'altération. Les évolutions de perméabilité sont interprétées en fonction de l'augmentation de la porosité. Cette mesure permet également de vérifier qu'aucun chemin d'écoulement préférentiel de type wormhole n'a été initié lors de l'altération. Un tel phénomène se traduirait en effet par une augmentation d'un facteur 10 à 100 de la perméabilité (Cohen *et al.*, 2008 ; Daccord *et al.*, 1989 ; Noiriel, 2004). Au cours d'essais préliminaires, il a été observé que la découpe successive de l'échantillon pouvait affecter la mesure de la perméabilité en modifiant le chemin d'écoulement préférentiel ou par destruction de la face d'entrée par la scie et le bouchage de certains pores en entrée d'échantillon. Cette altération de la perméabilité après découpe est visible Figure 20, la différence est suffisamment significative après le tronçonnage à 3 et 4 cycles pour être au-delà de la barre d'erreur de la mesure (5%). La découpe ne favorise pas l'évolution de la perméabilité dans un sens précis.

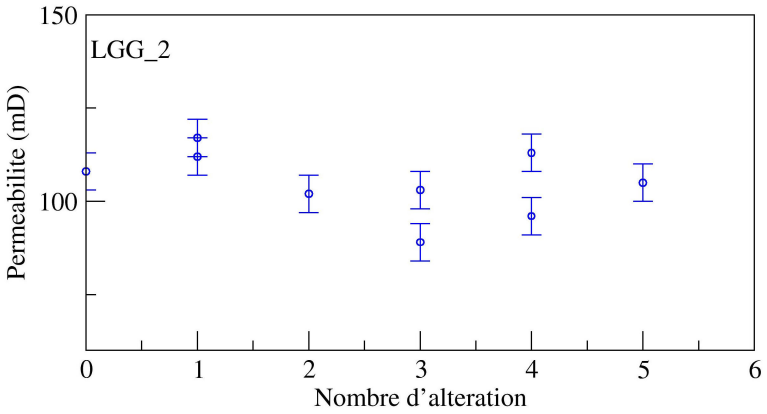


Figure 20 : Evolution de la perméabilité pour l'échantillon LGG_2 tronçonné après 1, 3 et 4 cycles d'altération.

Pour cette raison, il a été choisi d'estimer les évolutions de perméabilité sur des échantillons qui ne faisaient pas l'objet de manipulations entre différents cycles d'altération, c'est-à-dire les échantillons dédiés aux essais triaxiaux.

La réalisation d'une analyse fine de la microstructure de notre roche et de ses évolutions repose sur trois méthodes d'observation. Des observations sur lames minces et sous microscope électronique à balayage (MEB), ainsi que de l'imagerie par microtomographie RX, permettent de relier l'évolution de la microstructure à celle des propriétés pétrophysiques et mécaniques de notre calcaire d'étude. Les principes de ces différentes méthodes d'observation, ainsi que les techniques de préparation des échantillons, seront rappelés dans la section II.2-. Il est à noter que les observations sont réalisées sur la base d'un sous-échantillonnage à différents niveaux d'altération.

Ces études pétrophysiques ont été complétées par des mesures de propriétés mécaniques. Celles-ci se basent sur la réalisation d'essais triaxiaux dont le protocole sera développé dans la partie II.3-B). Notre campagne d'essais a été menée à quatre niveaux de confinement (2 MPa, 6 MPa, 11 MPa et 16 MPa) et trois niveaux d'altération (sain, altéré trois fois et altéré six fois). Ces essais ont pour but de caractériser l'impact de l'altération sur le comportement macroscopique de notre calcaire d'étude, et notamment :

1) sur sa résistance à la rupture, afin de corroborer les résultats d'études antérieures qui indiquaient un affaiblissement mécanique (Bemer et Lombard, 2010 ; Nguyen, 2012),

2) sur le mode d'endommagement et de rupture.

Enfin, il s'agit de déterminer si ces évolutions du comportement macroscopique apparaissent de façon progressive, ou au contraire soudaine, afin de déterminer s'il existe un seuil critique d'altération.

Les évolutions du comportement mécanique sont également approchées par la mise en œuvre d'essais couplés à des techniques d'imagerie. Ceux-ci permettent d'appréhender les mécanismes mis en jeu, des échelles centimétriques à microstructurales, ayant un impact sur la réponse macroscopique des échantillons. Ces essais sont réalisés sur des échantillons prélevés à différents cycles d'altération identiques (0, 3 et 6 cycles) pour ces essais couplés à de l'imagerie et les essais triaxiaux. Des essais sous conditions de chargement uniaxial combinés à des outils d'imagerie 2D optique et MEB sont conduits sur des sous échantillons de 35 mm (et 36 mm de diamètre) et d'environ 14 mm de long (de 7 mm d'arrête), respectivement. Enfin, une série de tests a également été réalisée sur une cellule triaxiale spécialement conçue pour de l'imagerie par microtomographie RX en cours d'essai. Les sous échantillons cylindriques testés ont une hauteur de 20 mm et 10 mm de diamètre. Le traitement des images obtenues au cours de la sollicitation mécanique est réalisé au moyen

d'outils de Corrélation d'images Numériques (CIN) dont les principes seront décrits dans la partie II.4-.

En raison du grand nombre de méthodes d'analyse et d'essais mis en œuvre dans cette étude, nous avons suivi le protocole d'essai résumé dans la Figure 21.

Afin d'assurer la meilleure reproductibilité des essais mécaniques, nous avons cherché à minimiser l'hétérogénéité des échantillons et avons à cette fin utilisé un scanner médical pour opérer une présélection. Cette première étape du protocole est décrite en section II.1-A).

Notre méthodologie repose sur l'utilisation de macro échantillons cylindriques de 40 mm de diamètre et de 80 mm de long, ce qui est une taille commune pour les essais mécaniques sur géomatériaux). Certaines éprouvettes seront sous échantillonnées par tronçonnages successifs pour obtenir des échantillons fils de plus petite dimension, pour la caractérisation pétrophysique et microstructurale de la roche. Les objectifs sont de comprendre si l'affaiblissement mécanique observé dans les études précédentes (Bemer *et al.*, 2010 ; Nguyen, 2012) se fait avec ou sans transition microstructurale observable et d'identifier les indices microstructuraux relatifs à une telle transition. Les échantillons préparés à des fins d'essais mécaniques seront : sains, altérés trois fois ou altérés six fois. Une mesure de perméabilité est réalisée à chaque étape d'altération, jusqu'au nombre d'altération final désiré. La Figure 21.A présente le protocole de mesure de la perméabilité et la préparation des échantillons pour les essais triaxiaux. On sélectionne un échantillon de 100 mm de long qui est ensuite réduit à 80 mm de long dans la zone d'intérêt afin d'éviter les effets de bords, liés à la concentration en acide en entrée et en sortie d'échantillon. La préparation des échantillons pour les essais associés à de l'imagerie MEB et microtomographique RX est la même, mais sans mesures de perméabilité et avec un redimensionnement des échantillons après altération afin de les réduire à la taille appropriée aux dispositifs utilisés.

Afin de mieux cerner les évolutions microstructurales un deuxième protocole de sous échantillonnage est effectué à chaque cycle d'altération sur deux échantillons jugés suffisamment homogènes et comparables (Figure 21.B). Un des échantillons est tronçonné à chaque cycle pair d'altérations, alors que le second échantillon est tronçonné à chaque cycle d'altération impair. D'un côté cette méthode peut accentuer les incertitudes de la mesure de perméabilité, mais d'un autre côté, elle permet d'optimiser le temps d'expérimentation, et donc, d'augmenter le nombre d'échantillons traités Tous les deux cycles d'altération l'échantillon est sorti pour être tronçonné. Il est préalablement séché, passé au scanner

médical, puis remis en cellule pour une nouvelle altération. On profite du temps de découpe et de séchage d'un échantillon pour monter dans la cellule d'altération l'échantillon compagnon. On alterne ainsi les altérations pour optimiser la procédure.

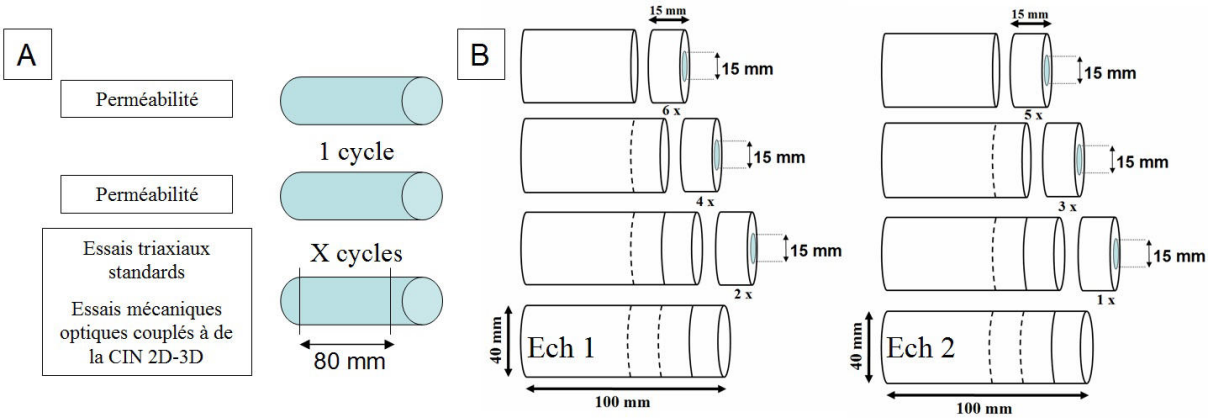


Figure 21 : A) préparation d'échantillons pour les essais mécanique couplés aux mesures de perméabilité B) préparations de sous échantillons à l'aide de deux échantillons pour obtenir l'évolution microstructurale à chaque cycle

II.1-Sélection des échantillons et description pétrophysique

II.1-A)Mesure de la porosité par scanner médical et sélection des échantillons

La méthode non destructive et permettant d'accéder de façon simple aux hétérogénéités pluri millimétriques le long de l'axe d'un échantillon est le scanner médical. Le principe réside dans le bombardement d'un échantillon par une source de rayons X rotative, ces rayons X étant absorbés en fonction de la densité du matériau.

L'utilisation d'un scanner médical (Figure 22) permet d'obtenir une succession de coupes radiologiques, espacées d'un demi-millimètre, le long de l'axe de la carotte. Après étalonnage sur des échantillons de même composition chimique que le matériau d'étude et de porosités connues, la densité radiologique moyenne calculée sur chaque coupe (fonction de l'énergie du faisceau et de la minéralogie) permet d'accéder à la porosité moyenne de celle-ci. On peut ainsi établir un profil de porosité le long de l'axe de la carotte. La mesure scanner permet d'obtenir une mesure de porosité moyenne de la carotte (par sommation des porosités de chacune des coupes) et de caractériser l'hétérogénéité à une échelle intermédiaire que l'on qualifiera de "mésoscopique" (sur quelques coupes). Dans d'autres cas (Jouini *et al.*, 2008) ces profils sont utilisés pour déterminer la composition chimique des échantillons et réaliser des prédictions de perméabilité. Nous avons de façon systématique scanné les carottes de 40 mm

de diamètre par 200 mm de long issues du forage de nos blocs de calcaire pour nos présélections.

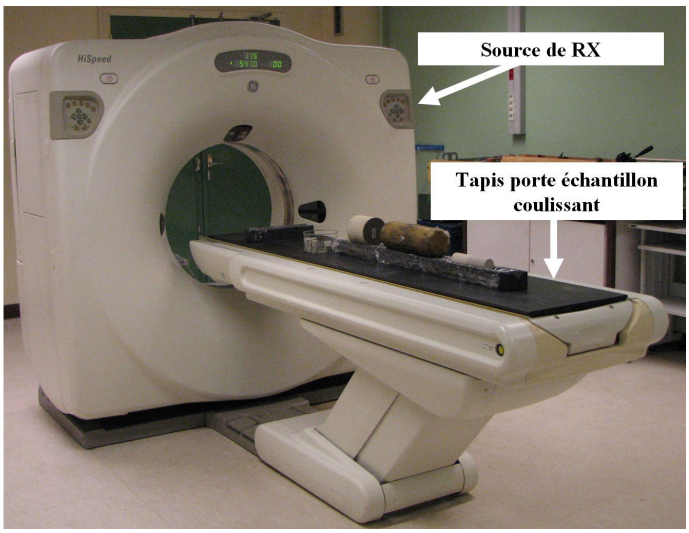


Figure 22: scanner médical utilisé à l'IFPEN pour l'obtention des porosités moyenne par tranche des échantillons de roche

Nous avons basé notre sélection dans un premier temps sur la porosité moyenne (Figure 23) selon :

- 1) l'homogénéité de la porosité de la carotte sur la longueur utile à nos mesures (80 mm), **24% (±0,5 %)**;

- 2) la porosité moyenne égale ou proche d'un échantillon à l'autre (**<1,5** % pour les essais mécaniques) ;

La porosité moyenne de l'échantillon n'est cependant pas une information suffisante pour procéder à une sélection d'échantillons macroscopiques de façon à assurer la représentativité et la reproductibilité de nos résultats mécaniques.

Nous nous sommes aussi appuyés sur les images reconstruites issues du scanner. La résolution de ces images est de 120 µm, et la différence de niveaux de gris dépend directement de la différence de densité locale du matériau. On va donc chercher à avoir des échantillons dont les images présentent le moins possible de fluctuations des contrastes locaux, car ces dernières indiquent des zones dont la densité dévie fortement de la valeur moyenne. Des exemples de sélections d'échantillons sont donnés dans la Figure 23.

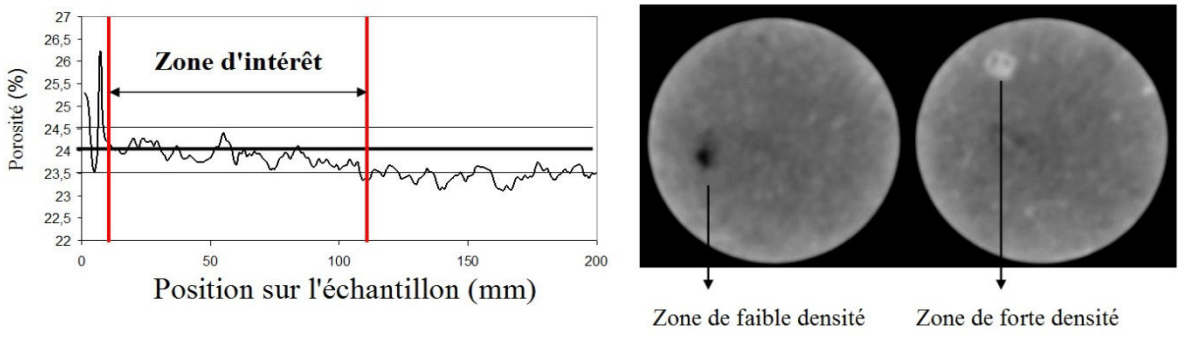


Figure 23 : Exemple de critère de sélection des échantillons avant altération. A gauche la selection selon la porosité moyenne, à droite l'affinage de la sélection par visualisation des hétérogénéités locales majeures.

II.1-B)Les mesures de la porosité

II.1-B-a) Mesure de la porosité par pesée

La méthode de porosité par pesée repose sur l'hypothèse que l'échantillon est saturé à 100% avec de la saumure. On mesure tout d'abord la masse de l'échantillon sec M_{sec} après 48h d'étuve à 60°C. L'échantillon est ensuite placé dans un dessiccateur et un vide primaire (environ 10^{-2} torr) est appliqué pendant au minimum 2 heures. Afin de s'assurer que toute la porosité est libérée de l'air humide initialement contenu, on injecte dans un premier temps du CO_2, puis on refait le vide. Le CO_2 s'associe à l'humidité de l'air résiduel, ce qui permet de la retirer lorsque l'on refait le vide à nouveau. De la saumure à 5 g/l de NaCl est alors injectée dans l'enceinte. Ce dosage en sel est mis de façon préventive pour éviter le gonflement d'éventuelle trace d'argile présent dans le milieu poreux. Afin d'éviter toute réaction entre notre saumure et la roche, nous tamponnons le pH de la solution en mélangeant préalablement la saumure à une poudre de notre carbonate. Ce mélange est ensuite filtré à 0,22 µm avant l'injection pour éviter toute pollution du milieu poreux par des particules apportées lors de cette opération.

La masse de l'échantillon est à nouveau mesurée à l'état saturé (M_{sat}). La masse volumique de notre saumure étant connue (1,011 g/l pour une saumure à 5 g/l de NaCl, et à la température ambiante), le volume poreux (V_p) peut être déterminé selon:

$$V_p = \frac{(M_{sat} - M_{\sec})}{1{,}011} \qquad (4)$$

En exprimant la masse en gramme et le volume en litre.

Le volume total V_t est obtenu à partir des dimensions de l'échantillon mesurées à l'aide d'un pied à coulisse. On obtient finalement la porosité par la formule suivante :

$$\phi = \frac{V_p}{V_t} \qquad (5)$$

L'incertitude sur cette mesure est principalement liée à la mesure des dimensions de l'échantillon, une quantification de cette erreur est donnée dans Nguyen (2012) à une valeur de 0,2%.

Cette mesure peut être réalisée sur les échantillons macroscopiques qui sont dédiés à l'altération. Cependant, une méthode plus pratique du point de vue de notre méthodologie expérimentale a été préférée à celle-ci et appliquée dans la plupart des cas. Il s'agit de l'estimation du volume de pores par saturation à la saumure lors de la mise en place de l'échantillon en cellule d'altération. Cette méthode est décrite ci-dessous.

II.1-B-b) Mesure de porosité par saturation à la saumure

L'estimation du volume de pores est réalisée au début de notre protocole d'altération, qui sera décrit dans la section II.1-D-c) . L'échantillon est préalablement mis à l'étuve pendant 48h puis est monté dans une cellule de type Hassler. Il est mis en place dans une membrane Viton permettant d'avoir une étanchéité entre le milieu poreux et le fluide de confinement (ici de l'eau). Un vide primaire est alors fait dans l'échantillon et une pression de confinement de 60 bar est appliquée. Une première injection de CO_2 permet de retirer l'air résiduel, puis on rétablit le vide dans l'échantillon. Enfin, de la saumure (préalablement équilibrée chimiquement avec de la poudre du carbonate et filtrée) est injectée dans le milieu poreux. Le volume injecté est mesuré par l'intermédiaire d'une pompe, ce qui permet une évaluation du volume poreux de l'échantillon.

Cette mesure nécessite la connaissance du volume 'mort' de notre dispositif. Celui-ci correspond au volume de tubage susceptible d'être saturé au moment de l'injection. Ce volume mort est estimé par saturation des tubes reliés à la pompe avec un plot métallique cylindrique de 40 mm de diamètre pour 80 mm de long traversé par un canal de diamètre connu à la place de l'échantillon. Le volume 'mort' correspond alors au volume injecté lors de la saturation, auquel est soustrait le volume du canal du plot métallique. Dans notre cas, le volume mort a été évalué à 3,16 ml.

Cette mesure a été préférée à la mesure par pesée, car on évite les incertitudes de mesure du volume de l'échantillon et car la mesure du volume de saumure injectée fait de toute façon partie du protocole d'altération. Il y a ainsi une économie de temps et de mesure. Notons que cette mesure est réalisée à chaque mise en place de l'échantillon au sein de la cellule d'altération. L'erreur de la mesure est limitée par la précision de nos pompes à 10^{-3} de précision sur la mesure de volume.

II.1-B-c) Mesure de porosité par injection d'Hélium

Cette mesure de la porosité a été réalisée car c'est une méthode simple qui permet des mesures relatives même si la valeur absolue obtenue est entachée d'une surévaluation dont nous parlerons lors de la présentation des résultats de la méthode. Elle est mise en œuvre de manière systématique sur les sous échantillons (15 mm de diamètre et 15 mm de haut) prélevés au fur et à mesure des cycles d'altération. Cette méthode repose au préalable sur l'estimation du volume total (VT) de l'échantillon par un pycnomètre à poudre. Ce volume total est déterminé par la différence d'avancée d'un piston dans un cylindre calibré. On place dans le cylindre une quantité de poudre suffisante pour enrober l'ensemble de l'échantillon si on le plonge dans cette poudre et l'on applique une force suffisante pour tasser au maximum cette poudre. L'avancée du piston nous donne la valeur du volume de poudre. On place ensuite l'échantillon dans le cylindre avec la même quantité de poudre que précédemment et on applique la même force. La différence d'avancée du piston entre les deux situations nous donne le volume total de l'échantillon.

Une fois ce volume total établi, l'échantillon est placé dans un porosimètre Hélium. On utilise l'Hélium en raison de la très petite taille de ses atomes, qui permettent ainsi d'accéder à l'ensemble du réseau poreux connecté. On détermine grâce au porosimètre disponible à l'IFPEN, le volume solide (VS). Le porosimètre est muni de deux chambres C1 et C2. On place notre échantillon dans la chambre C2 qui est isolée de la chambre C1 et initialement laissée à pression ambiante. On applique une pression P_1 à la chambre C1. On met alors en communication les deux chambres, et on note la pression P_2 une fois l'équilibre atteint.

On obtient le volume solide à l'aide de la loi des gaz parfaits :

$$P_1 \times V_1 + P_{atm} \times (V_2 - VS) = P_2 \times V_1 + P_2 \times (V_2 - VS) \qquad (6)$$

le volume solide s'exprime alors comme :

$$VS = V_2 - V_1 \times \frac{P_1 - P_2}{P_2 - P_{atm}} \qquad (7)$$

La connaissance du volume total et du volume solide, permet d'exprimer la porosité comme :

$$\Phi = \frac{VT - VS}{VT} \times 100 \qquad (8)$$

II.1-C)Description du réseau poreux

Une meilleure connaissance du réseau poreux de notre roche passe par la définition de la taille des pores et de la taille des seuils d'entrée de pores et ce à plusieurs niveaux d'altération afin de quantifier les évolutions induites. Pour obtenir ces informations, nous avons mis en œuvre deux techniques.

II.1-C-a) Analyse de la forme de la porosité par résonance magnétique du proton

La RMN est couramment utilisée pour caractériser la complexité des familles de pores en présence (macro et micropores), en se basant sur la mesure du temps de relaxation des protons (Dennis *et al.*, 1997) et sur la connaissance du rapport Volume/Surface de l'échantillon. Le principe de la RMN repose sur les propriétés magnétiques du noyau atomique des espèces chimiques, et en ce qui nous concerne de l'atome d'hydrogène de l'eau. Les noyaux atomiques sont en rotation sur eux-mêmes, cette rotation confère au noyau une aimantation propre, qui est caractérisée par un vecteur de rotation appelé spin magnétique. Les spins des protons de la saumure n'ont pas d'orientation préférentielle. Mais, si un champ magnétique extérieur intense (B0) est appliqué à l'échantillon saturé en saumure on polarise les protons, c'est-à-dire qu'on force un alignement des spins des protons dans la direction de B0. Si en plus on applique un pulse magnétique à l'aide d'un deuxième champ magnétique extérieur (B1), on perturbe l'alignement initial des spins, qui se réorientent suivant B1. Ce principe est schématisé Figure 24.

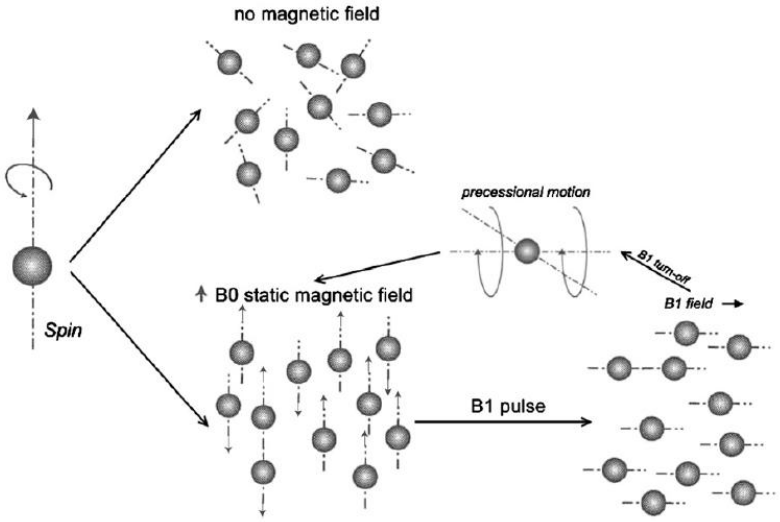


Figure 24 : Principe de la RMN d'après Zinszner et Pellerin (2007)

A la fin de ce pulse, les protons vont revenir à l'équilibre d'alignement imposé par B0. Le temps de retour à l'équilibre est appelé temps de relaxation. Ce dernier dépend de plusieurs facteurs, et notamment :

1) du magnétisme naturel des minéraux présents dans la roche (négligeable dans le cas de notre carbonate composé à 99% de $CaCO_3$),

2) de la forme et de la taille de la porosité qui va définir l'interaction fluide-roche. Plus l'espace poral est grand, plus le temps de relaxation est long.

Le temps de relaxation de l'aimantation des protons est mesuré pour les différentes composantes de cette dernière. On distingue la composante longitudinale Mz (suivant la direction du champ B0) et les composantes transverses Mx et My (contenues dans un plan perpendiculaire à B0). Le temps de retour à l'équilibre de la composante Mz est appelé temps de relaxation spin-réseau et est noté T1. Le retour à l'équilibre de Mz implique un changement d'énergie du système. Le terme « réseau » correspond à l'environnement autour du noyau dans lequel se dissipe l'énergie lors du retour à l'équilibre initial de Mz. Au contraire, le retour à l'équilibre des composantes Mx et My (qui s'annulent) se fait sans dissipation d'énergie, avec une constante de temps T2, appelée temps de relaxation spin-spin. Nous nous intéressons dans notre cas au temps T2 qui est interprété comme représentatif du rapport Volume/Surface (V/S), et de ce fait de la distribution des tailles de pores. Des études antérieures systématiques ont permis de calibrer des valeurs de T2 (en millisecondes) en fonction des tailles de pores.

II.1-C-b) Analyse de la taille d'entrée de pore par injection de mercure à haute pression

La seconde méthode que nous avons utilisée est l'injection de mercure à haute pression (IMHP ou HPMI en anglais). Cette méthode consiste à injecter du mercure par incréments de pression dans un échantillon de roche en considérant que le mercure est non mouillant avec la roche. On mesure alors à chaque valeur de pression le volume de mercure injecté. La courbe obtenue est la courbe de Pression Capillaire qui permet de déterminer une distribution de rayons des seuils d'accès aux pores, en utilisant l'équation de Washburn (1921) :

$$P = \frac{2.\gamma.|\cos\theta|}{R} \qquad (9)$$

avec P la pression, R le rayon d'entrée de pores, γ le coefficient de tension de surface du mercure (0,485 $N.m^{-1}$) et θ l'angle de mouillabilité (140°). Ce qui donne :

$$p = \frac{0,62}{R} \qquad (10)$$

Avec R en m et P en Pascal. On représente généralement les résultats en courbe saturation capillaire et sa dérivée comme dans l'exemple présenté dans la Figure 25.

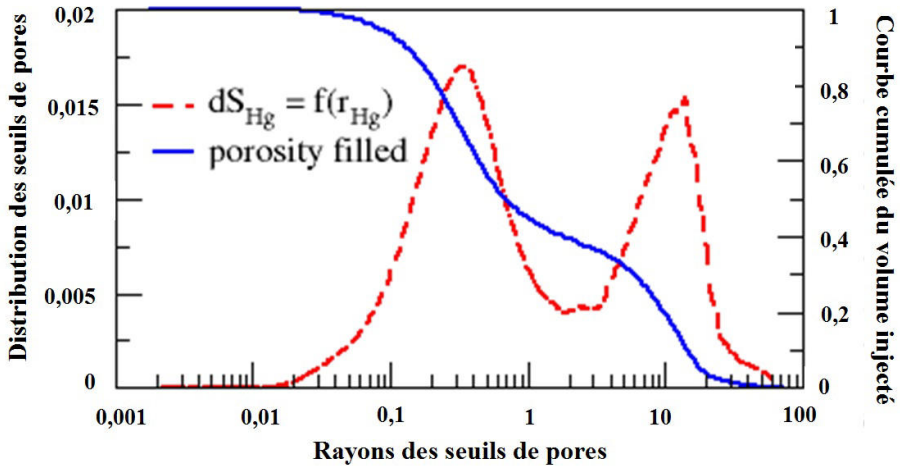


Figure 25 : courbe de saturation (bleue) et l'opposée de la dérivée (rouge) donnant le rayon moyen d'accès aux pores.

Cette distribution des seuils d'accès aux pores peut être reliée à une valeur de perméabilité théorique à l'aide des lois de Swanson (1981) et Thomeer (1960). Le lecteur pourra se référer à la thèse d'Egermann (2003) pour plus de détail. On donnera ici uniquement les deux formules proposées par Thomeer et par Swanson. D'après Thomeer :

$$k = 3{,}8060 \times G^{-1{,}334} \left[\frac{V_{b\infty}}{P_d} \right]^2 \qquad (11)$$

avec, k la perméabilité en mD, G est un paramètre d'ajustement appelé facteur de forme de la courbe de pression capillaire, $V_{b\infty}$ le volume occupé par le mercure en % extrapolé pour une saturation infinie et P_d la pression de déplacement extrapolée à déplacement nul en bar.

D'après Swanson :

$$k = 355 \times \left[\frac{Vb}{Pc} \right]_A^{2{,}005} \qquad (12)$$

avec, k la perméabilité en mD, Vb le volume occupé par le mercure en % Pc la pression en bar. Dans cette expression le terme entre crochets représente le maximum de la courbe de pression capillaire, correspondant à la fin du régime de percolation. Nous utiliserons principalement la formule de Thomeer qui s'adapte mieux à des valeurs de perméabilité inférieures au Darcy.

II.1-D)Équipement et protocole d'altération

II.1-D-a) Dispositif expérimental

Nous avons utilisé un montage préexistant qui permet d'effectuer des cycles d'altération dits homogènes (Egermann *et al.*, 2006), auquel nous avons apporté des améliorations. Les altérations sont réalisées à l'aide d'un acide activé thermiquement, en suivant un protocole mis au point et décrit par Egermann *et al.*, (2006). Le montage utilisé est présenté dans la Figure 26.

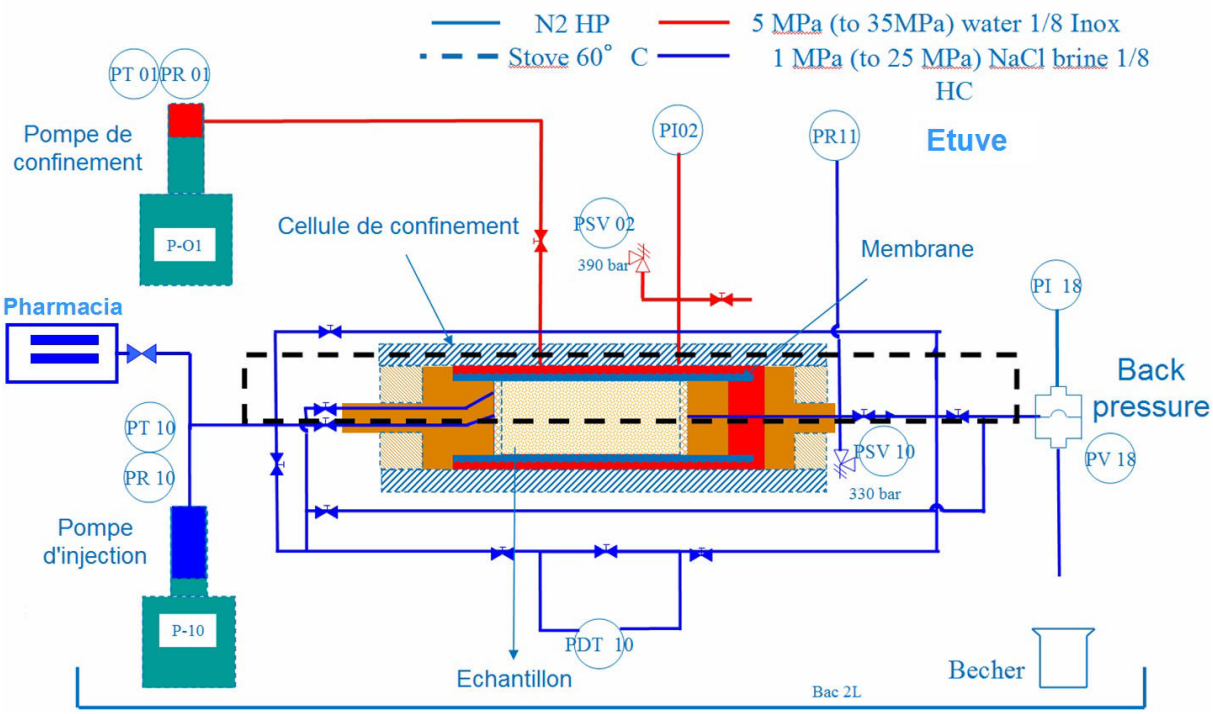


Figure 26 : Schéma de montage de la cellule de lavage et du circuit hydraulique permettant l'altération homogène d'un échantillon de roche ainsi qu'une mesure de sa perméabilité.

Ce dispositif s'articule autour d'une cellule de type Hassler, communément utilisée à l'IFPEN pour 'laver' des échantillons de puits. Elle permet d'appliquer une pression de confinement maximale de 390 bar sur un échantillon de roche cylindrique. Celui-ci est isolé du fluide de confinement par une membrane en Viton. La pression de confinement est maintenue à l'aide d'une pompe Isco dont le volume de chambre est de 60 ml.

Le piston 'amont' de cette cellule est muni de deux arrivées pour les fluides, le piston 'aval' est doté d'une unique sortie. Le circuit hydraulique (en bleu sur la Figure 26) est alimenté par une pompe Isco de 260 ml permettant une régulation en pression ou en débit. Afin de maintenir une pression de pore constante dans le milieu poreux lorsque la pompe applique un débit, un dispositif de régulation (dit de "back pressure") est placé en sortie du circuit hydraulique. Le dispositif régule au moyen d'une valve contrôlée par pression qui ne s'ouvre que lorsque le fluide lui impose une pression fixée par l'expérimentateur réalisée en appliquant la pression de gaz (azote).

Un capteur de pression différentielle de capacité 400 mbar est placé, en dérivation, entre les extrémités de l'échantillon. Celui-ci permet l'enregistrement du différentiel de pression (perte de charge) généré par la mise en écoulement du fluide de pore au sein de l'échantillon. Dans le cadre de cette thèse, le montage initial a été modifié pour permettre la mesure de

perméabilité dans les deux directions de l'axe de la carotte. Un ensemble de vannes et de lignes d'écoulement permet la mise en écoulement du fluide dans les deux directions, et ce, en utilisant une seule et unique pompe. L'ensemble du dispositif hormis les pompes est placé dans une étuve.

La mise en place de l'échantillon se fait en suivant le protocole décrit section II.1-B-b) .

II.1-D-b) Mesure de perméabilité à la saumure

Les mesures de perméabilité sont réalisées sur des échantillons de 40 mm de diamètre par 100 mm de long. L'entrée et la sortie de l'échantillon présentent des dérivations amenant à un capteur de pression différentiel. Après la saturation des échantillons à la saumure, lors de l'écoulement à un débit donné, un différentiel de pression entre l'entrée et la sortie de l'échantillon s'établit. Ce différentiel est mesuré dans notre cas par un capteur de pression différentiel de la marque ABB. Pour les mesures de perméabilité, la gamme de mesure de notre capteur est de 0 à 400 mbar (limite maximum conseillée). Dans le cas des mesures bidirectionnelles le capteur est réglé sur une gamme de -200 à +200 mbar. Afin de minimiser les erreurs lors de l'évaluation de la perméabilité, nous réalisons une mesure continue du différentiel de pression en appliquant des paliers de débits successifs automatisés par la programmation des pompes. On enregistre alors à chaque palier de débit la pression différentielle. La formule de Darcy suivante nous permet d'obtenir la perméabilité de notre échantillon :

$$Q = k.S.\frac{\Delta P}{\mu.L}, \qquad (13)$$

avec Q le débit d'injection en m^3/s, k la perméabilité en m^2, S la surface d'injection en m^2, ΔP le différentiel de pression en Pa, L la longueur de l'échantillon en m et μ la viscosité dynamique de la saumure en Pa.s.

A titre d'exemple, la Figure 27 montre une acquisition de pression différentielle pour des paliers de débit successifs. La détermination de la perméabilité se fait alors par calcul de la pente $Q/\Delta P$. La valeur de viscosité dynamique de la saumure, à 5 g/l de NaCl à une température de 60°C et une pression de pore de 10 bar, μ est obtenue en utilisant les résultats de Kestin *et al.*, (1981).

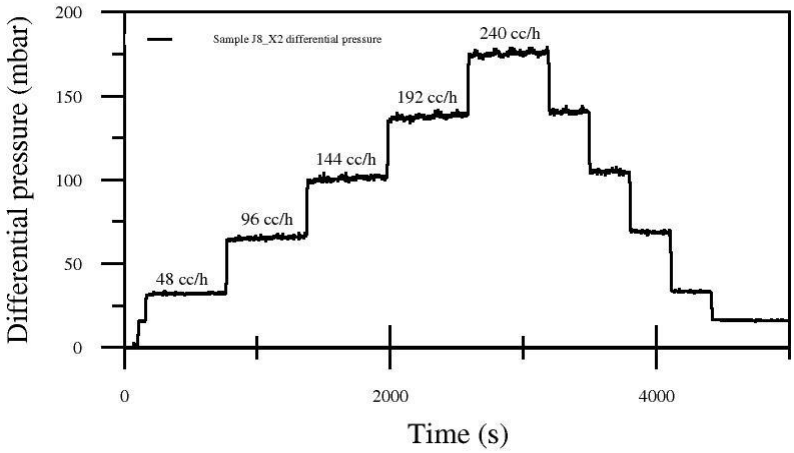


Figure 27:évolution de la pression différentielle avec les paliers de débit successifs.

Les incertitudes induites par cette méthode ont été estimées à 5% à l'aide d'un formulaire interne à l'IFPEN permettant d'estimer l'incertitude de cette mesure par la formule suivante :

$$u_K^2 = \mu^2 * \left(\left(\frac{L\,a}{S} \right)^2 u_\mu^2 + \left(\frac{\mu\,a}{S} \right)^2 u_L^2 + \left(\frac{-\mu\,L\,a}{S^2} \right)^2 u_s^2 + \left(\frac{\mu\,L}{S} \right)^2 u_a^2 \right) \qquad (14)$$

Avec : μ la viscosité de la saumure à 60°C, L la longueur de l'échantillon, *a* la pente de la régression linéaire obtenue à partir des mesures expérimentales (Q = *a*.ΔP + b), S la section de l'échantillon, u_μ ; u_L ; u_a et u_s les incertitudes de chaque mesure.

II.1-D-c) Protocole d'altération

L'acide retard utilisé est l'ACIDGEN® commercialisé par la société Cleansorb. Ce produit est couramment utilisé dans l'industrie pour les traitements d'acidification des puits. Son action est ralentie par l'ajout d'additifs mélangés à l'acide, qui permettent une pénétration plus lointaine dans la formation.

Pour ralentir la réaction et mieux la maîtriser nous diluons l'acide commercial environ dix fois (20 ml d'acide pour 180 ml d'eau distillée, mesurés à la burette). Nous avons aussi réalisé des essais d'altération avec une solution d'acide dilué cinq fois afin de vérifier si la dissolution était deux fois plus intense (en termes d'augmentation de la porosité) et si elle reste homogène. Il s'est avéré qu'en effet on double l'augmentation de porosité tout en conservant l'homogénéité de la dissolution. Cependant, la grande quantité de matière dissoute et/ou détachée lors de la dissolution entraîne des bouchages dans le circuit d'écoulement et des difficultés à effectuer le nettoyage de l'échantillon à la saumure. Nous n'avons donc pas retenu ce mode opératoire comme protocole, mais uniquement comme solution d'appoint, en cas de nécessité d'obtenir rapidement des échantillons. L'acide retard initial (contenant des

additifs) est cependant encore trop acide (pH d'environ 3) pour pouvoir l'utiliser directement, car il entraînerait une dissolution immédiate lors de son injection. Aussi, il est préalablement tamponné à l'aide d'une poudre de notre calcaire, afin de neutraliser son acidité lors de sa mise en place dans l'échantillon. On prend soin de mesurer le pH de cette solution au cours de son tamponnage. Une fois l'acide à l'équilibre avec la poudre de calcaire (pH proche de 7), celui-ci est filtré à 0,22 µm avec un filtre en polycarbonate de la marque Nuclepore. Cette solution est injectée dans l'échantillon à l'aide d'une pompe Pharmacia à un débit de 500 mL/h et à température ambiante.

La solution acide et la saumure déjà en place dans l'échantillon étant parfaitement miscibles, trois volumes poreux sont injectés dans la carotte pour assurer la bonne substitution par la solution acide. Une fois cette saturation réalisée, on isole la sortie de l'échantillon et on fait circuler sur la face d'entrée environ 10 ml de saumure. Cette opération de 'léchage' de l'entrée de la carotte permet d'enlever la solution acide retenue dans les rainures du piston, afin de limiter l'apport d'acide 'frais' au cours de la réaction d'acidification à la surface de l'échantillon et une altération plus forte dans cette zone. L'ensemble des vannes est alors fermé et la température de l'étuve réglée à 60°C afin de réactiver l'acide retard en altérant les additifs thermosensibles.

L'échantillon est ensuite isolé pendant une nuit en conditions non drainées, pendant ce temps la pression de pore est enregistrée (Figure 28).

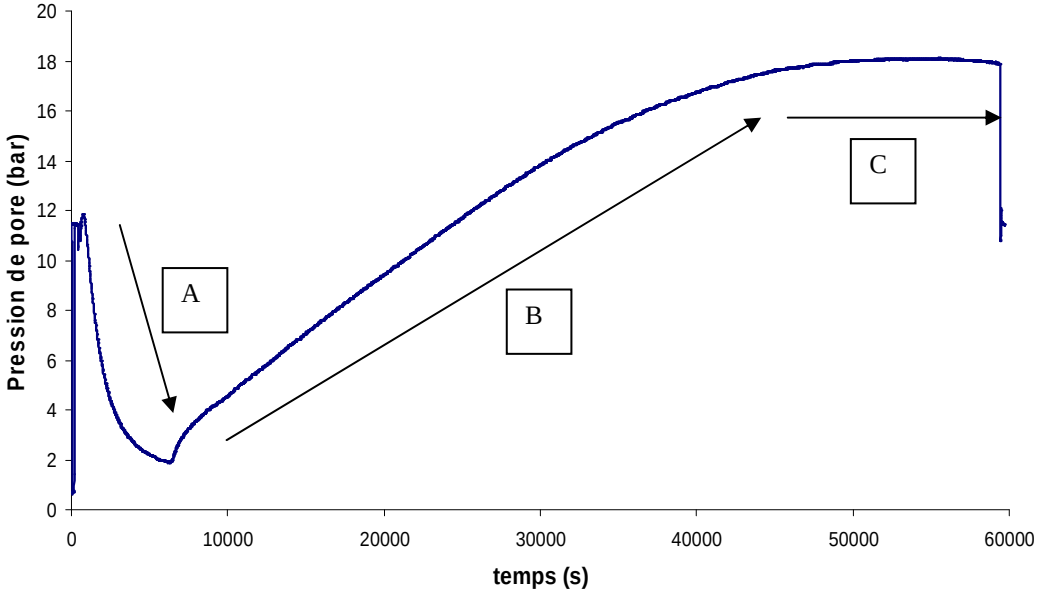


Figure 28 : Evolution de la pression de pore après injection de l'acide

L'enregistrement de la pression de pore nous montre une évolution en trois phases (Figure 28):

A) Baisse de la pression de pore associée à l'augmentation de la porosité

B) Augmentation de la pression de pore liée à une forte production de CO_2 gazeux au cours de la réaction.

C) Equilibre chimique entre le fluide et la roche, on considère que la réaction est terminée.

Le réseau poreux est ensuite balayé par de la saumure à un débit de 10 mL/min pour un total de quatre volumes poreux. Les effluents issus d'un cycle d'altération sont collectés.

C'est à partir de ce moment que notre méthodologie se différentie en fonction de nos objectifs, comme nous l'avons expliqué dans l'introduction de ce chapitre :

Si l'échantillon en place va être utilisé pour des essais mécaniques, on laisse s'écouler quatre à cinq volumes poreux de saumure pour s'assurer que tout le CO_2 gazeux résiduel soit enlevé du circuit et on réalise une mesure de perméabilité après altération. On réinjecte ensuite un acide nouvellement dilué et tamponné et l'opération est réalisée jusqu'à atteindre le niveau d'altération ciblé. Une fois ce niveau atteint, on démonte l'échantillon, on le scie dans la partie de 80 mm de long que l'on avait présélectionnée, on passe l'échantillon au scanner

médical pour s'assurer de l'homogénéité de l'altération après l'avoir séché 48h à l'étuve. L'échantillon peut alors être utilisé pour les essais triaxiaux

Si l'échantillon est voué à être utilisé pour la caractérisation pétrophysique et microstructurale, il est alors sorti du dispositif tous les nombres pairs ou impairs de cycle d'altération (rappel : Figure 21). Il est alors tronçonné de 1,5 cm à la face de sortie de l'échantillon, puis séché et passé au scanner médical pour s'assurer de l'homogénéité de l'altération. Une fois son échantillon compagnon altéré le nombre de fois nécessaire, il est remis en cellule après mesures précises de ses dimensions au pied à coulisse. Soit une mesure de porosité par pesée est faite avant la mise en place de l'échantillon, soit une mesure de porosité par saturation est faite lors de la mise en place de l'échantillon. Le protocole recommence ensuite pour deux cycles d'altération.

II.2-Analyses microstructurales

Nous présentons succinctement dans cette section les outils permettant une caractérisation de la microstructure de notre calcaire d'étude et de ses évolutions avec l'altération. Nous verrons cependant que les techniques de Microscopie Electronique à Balayage et de microtomographie RX seront utilisées également dans le cadre d'essais mécaniques couplés à la corrélation d'images numériques. Nous évoquerons donc lors de la présentation des résultats issus de la mise en œuvre de ces essais, les conditions plus spécifiques d'acquisition et/ou de reconstructions inhérentes à ces deux techniques d'imagerie.

II.2-A)Microscope optique et cathodoluminescence

La première méthode d'observation repose sur la description de lames minces. Pour les besoins de notre étude, les échantillons sont observés en lumière polarisée non analysée (LPNA). Les grandissements utilisés (x20 à x200) permettent d'imager des surfaces de quelque millimètre à quelque dizaine de micromètres de côté avec une résolution de 4 à 10 µm. Lors de la préparation des lames, la porosité de l'échantillon est imprégnée sous vide par une résine Epoxy bleue permettant d'identifier facilement la porosité. D'une manière générale, les lames minces permettent d'apporter des informations sur la répartition des ciments, de la porosité et des grains, mais aussi de caractériser ces grains composant la roche de façon simple et rapide. Une quantification de la proportion des différentes phases est également possible.

Cette méthode couplée à la cathodoluminescence donne des informations sur la mise en place et la diagénèse de la roche pendant son enfouissement jusqu'à son exhumation. On pourra se référer à Barbin et Schvoerer (1997) pour une description pour détaillée de cette méthode en géosciences. L'imagerie par cathodoluminescence est basée sur le bombardement d'électrons de la surface polie, afin d'exciter les électrons des couches de valence des atomes. La relaxation vers l'état fondamental après l'excitation induit une émission de photons dont les longueurs d'onde (et donc les couleurs) dépendent de la composition du cristal bombardé, du réseau cristallographique, de la présence d'éléments activateurs minoritaires, tel que le manganèse, qui se substituent aux éléments majeurs de la structure cristalline de la calcite. Le principe est schématisé sur la Figure 29, où l'énergie E1 correspond à l'énergie nécessaire pour faire passer un électron de la couche de valence à la couche de conduction (énergie de gap). L'énergie E2 est l'énergie émise sous forme radiative lors du retour à l'équilibre. Cette énergie peut être inférieure à E1 si le retour à l'équilibre se fait par piégeage de l'électron au voisinage d'une impureté, auquel cas il réside dans la bande interdite et émet une radiation (photon) correspondant au niveau énergétique du piège, avant un retour à l'état fondamental. Cette méthode nécessite de mettre la lame mince sous vide pour permettre au canon à électron d'être opérationnel. Le canon à électrons est fixe et bombarde une zone de la lame sur un spot large (quelque mm²). C'est à l'utilisateur de déplacer la lame à l'aide de la platine micrométrique pour imager d'autres zones.

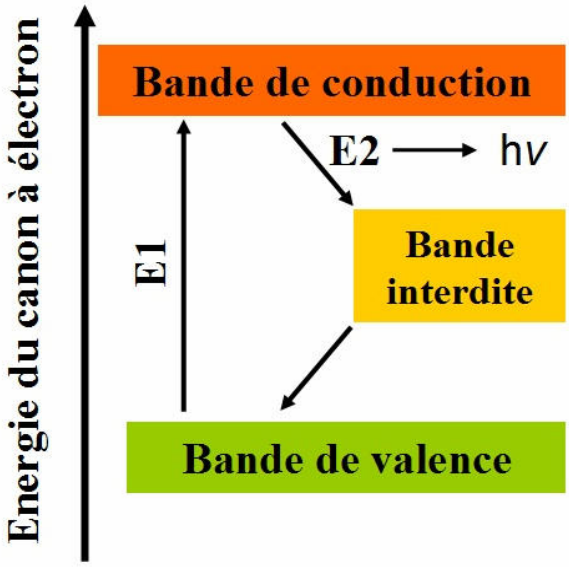


Figure 29 : principe de la cathodoluminescence

II.2-B) Microscope électronique à balayage (MEB)

Le MEB a été utilisé dans le cadre de cette thèse à deux fins. La première est la description de la microstructure du matériau à l'échelle micrométrique. La seconde utilisation a été dans le cadre de la corrélation d'images numériques pour atteindre une échelle d'observation nous permettant de mieux comprendre les mécanismes microstructuraux activés lors d'un chargement mécanique. La méthode de corrélation d'images numérique 2D-MEB nécessite une estimation des erreurs, notamment celles induites par le fonctionnement du MEB lui-même lors de l'acquisition des images et donc une compréhension complète de son fonctionnement. Une description plus précise du fonctionnement du MEB ainsi que les optimisations que nous avons menées pour minimiser ces erreurs seront données dans le chapitre V.1-A), partie dédiée à la corrélation d'images au MEB. Nous allons rappeler ici uniquement le principe général du fonctionnement d'un MEB.

Le principe de l'imagerie à l'aide d'un MEB repose sur l'interaction électrons-matière. Un faisceau d'électrons est focalisé et accéléré dans une colonne dédiée à cet effet (Figure 30).

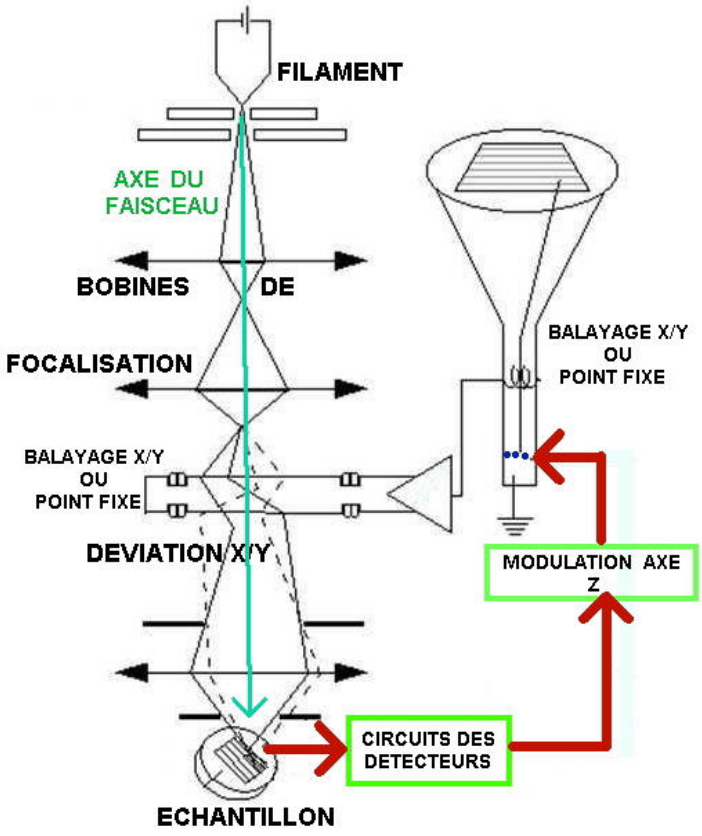


Figure 30 : Principe de fonctionnement du MEB

Ce faisceau d'électrons est très fin et pour pouvoir imager la surface de l'échantillon on lui impose un mouvement de balayage grâce un ensemble de bobines. Lorsque les électrons du faisceau incident rencontrent la matière, deux types d'électrons vont êtres réémis : les électrons secondaires (à faible énergie) et les électrons rétrodiffusés (à forte énergie). Ces deux types d'électrons sont enregistrés par des capteurs différents et permettent d'accéder à différents types d'information. Les électrons secondaires permettent une observation de la topographie de la surface, tandis que les électrons rétrodiffusés donnent une information sur la cristallographie et la composition de la surface.

II.2-C)Microtomographe de laboratoire

Les observations 2D sont complétées par des observations 3D obtenues par microtomographie RX. Tout comme pour le MEB, le microtomographe de laboratoire a été utilisé à des fins d'observations microstructurales. De plus il a été associé à une cellule triaxiale miniaturisée permettant la réalisation d'essais mécaniques *in-situ*. Nous allons ici rappeler brièvement le principe de la microtomographie. Nous apporterons les précisions sur les conditions d'acquisition et de reconstruction de nos images dans la partie dédiée aux résultats de corrélation d'images 3D (V.2-A), la maîtrise de ces conditions étant une condition nécessaire à l'obtention de résultats les plus précis possible.

Le principe de la microtomographie est d'obtenir une image en trois dimensions de notre échantillon à partir d'un ensemble de radiographies d'absorption des rayons X. On applique à l'échantillon cylindrique autour de son axe des incréments de rotations fixés par l'utilisateur, à chaque pas on obtient une projection radiologique de l'échantillon (Figure 31). L'intensité du faisceau arrivant au détecteur dépend de la densité du matériau traversé et de l'intensité (connue) du faisceau de rayons X incident.

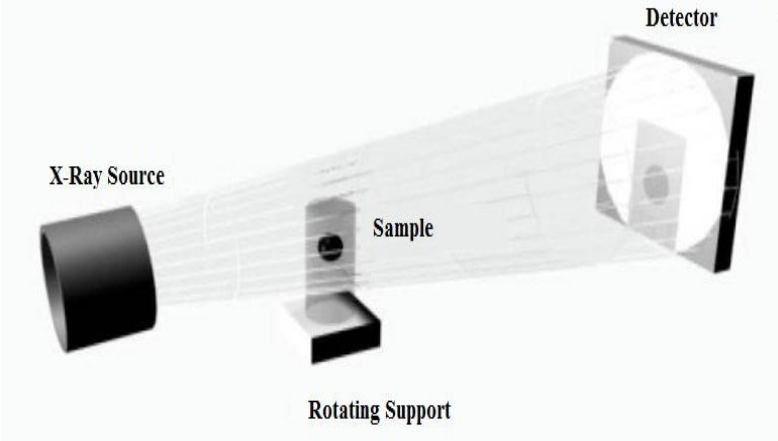


Figure 31 : Principe de fonctionnement d'un microtomographe de laboratoire.

Le microtomographe disponible à l'IFPEN permet d'obtenir une résolution maximale de 3 µm pour un échantillon cylindrique de 5 mm de diamètre. Le faisceau incident est produit par une source de la marque Phoenix, dans laquelle le bombardement d'un filament de tungstène par des électrons produit des rayons X. Les électrons sont accélérés dans un tube par une tension accélératrice maximale de 180 kV et avec une puissance maximum de 15 W. Le faisceau de forme conique va traverser l'échantillon et couvrir l'ensemble du capteur de 2304 x 2304 pixels. Nous avons acquis 1800 projections par échantillon à partir desquelles on reconstruit un volume 3D.

La reconstruction est menée à l'aide du logiciel Datos qui utilise l'algorithme de Feldkamp *et al.,* (1984) spécifiquement adapté à la reconstruction d'images obtenues par un faisceau conique. Cette technique permet une description de la répartition spatiale des phases solides et poreuses au sein de l'échantillon. Il est possible, par traitement des volumes, de pousser cette analyse vers une quantification des paramètres du réseau poreux équivalent (tailles des pores, des seuils) et d'estimer la perméabilité du volume imagé (Youssef *et al.,* 2007).

II.3-Caractérisation mécanique du matériau

II.3-A)Dispositif et préparation des échantillons

Une campagne d'essais triaxiaux a été menée à différents niveaux de confinement sur des échantillons sains et altérés. L'objectif de cette campagne est la détermination de l'impact de l'altération sur les modules élastiques de notre matériau d'une part, et d'autre part, sur la pression critique et les modes de rupture. Cette étude visait initialement à une caractérisation du comportement à la rupture dans le domaine fragile ; car les essais sont réalisés à faible pression de confinement, ce qui nous permet une analogie avec les essais uniaxiaux couplés à

la CIN. Nous verrons que cette analogie n'est pas toujours justifiée car l'effet de l'altération peut entraîner un changement de mode de rupture.

II.3-A-a) Description de la presse triaxiale AT40

La cellule triaxiale AT40 utilisée pour cette caractérisation du comportement mécanique macroscopique, est composée d'une chambre de confinement, qui permet d'appliquer à l'échantillon une pression de confinement (P_c) choisie, d'une presse mécanique qui permet l'application de la contrainte axiale (σ_a) et de deux pompes hydrauliques pour appliquer une pression de pore (P_p).

Le schéma de principe est rappelé dans la Figure 32.

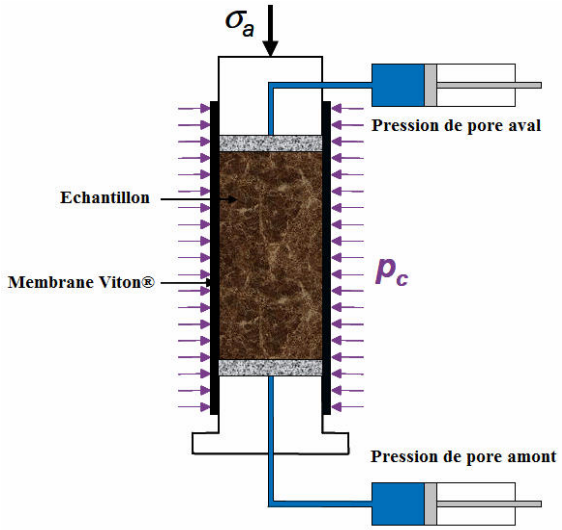


Figure 32 : Schéma de l'AT40. D'après Nguyen (2011)

La pression de confinement est appliquée en injectant un volume d'huile (incompressible) à l'aide d'une pompe hydraulique de capacité maximale de 64 MPa. L'échantillon est isolé de l'huile par une membrane Viton®.

La pression de pore (P_p) est appliquée à l'aide de deux pompes, identiques à la pompe de confinement, qui régulent la pression dans la partie inférieure et supérieure de l'échantillon. La saturation de l'échantillon se fera par la face inférieure pour assurer une saturation maximale de l'échantillon et éviter le piégeage d'air résiduel. Ces pompes sont contrôlées en pression afin d'assurer que l'on ait une pression de pore constante au cours de nos essais (afin de contrôler la contrainte effective moyenne).

Le chargement axial σ_a est appliqué par une presse mécanique de capacité 40 tonnes. Cette presse peut être pilotée en force, en déplacement ou en vitesse de déformation. Dans le cadre de la thèse, nous avons opté pour un pilotage en force contrôlé par la cellule de force à la base de l'échantillon. Le piston en contact avec l'échantillon présente une forme conique qu'il est nécessaire de prendre en compte lors du calcul de la contrainte axiale car la pression de confinement s'oppose à la force appliquée (Figure 33). Dans cette figure, S_{piston} et S_{ech} correspondent aux surfaces en contact du piston et de l'échantillon respectivement. La valeur $F_{cellule}$ est mesurée par un capteur de force à la base de l'échantillon (100 kN de limite dans notre cas).

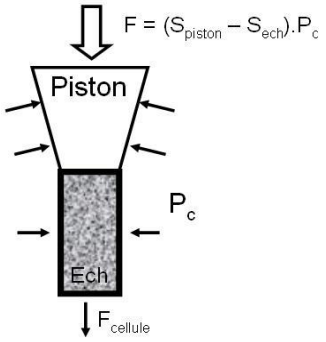


Figure 33: schéma de principe du piston de la cellule AT40

On obtient alors σ_a par la formule suivante :

$$\sigma_a = \frac{F_{cellule} - (S_{piston} - S_{ech}).P_c}{S_{ech}} \qquad (15)$$

L'ensemble du dispositif est complété par un capteur LVDT externe fixé au piston qui nous permet de mesurer le déplacement global du piston. Ce capteur est donné à titre indicatif car la mesure obtenue cumule la déformation de l'échantillon mais aussi de l'ensemble du piston lors du chargement. L'ensemble du montage est visible Figure 34.

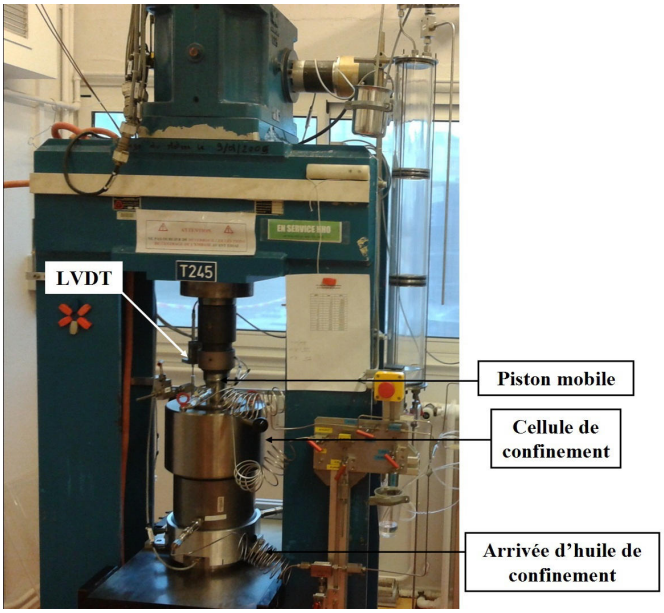


Figure 34:montage AT40 pour essais triaxiaux

II.3-A-b) Préparation et mise en place de l'échantillon

Les déformations de nos échantillons ont été mesurées à l'aide de jauges de déformation. On colle à la surface de l'échantillon six jauges de déformation. Trois sont placées verticalement pour mesurer les déformations axiales (ε_a), et trois sont placées horizontalement pour mesurer les déformations radiales (ε_r) (Figure 35.a).

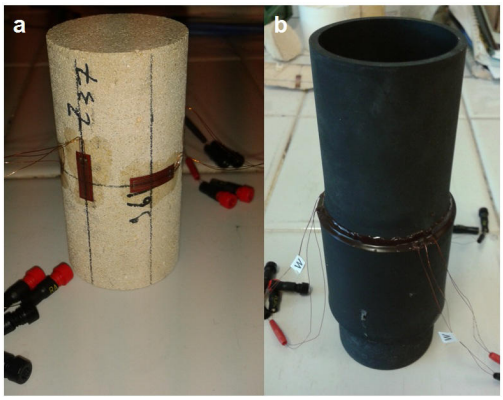


Figure 35 : a) échantillon préparé pour les essais triaxiaux, on y voit une jauge de mesure axiale et une jauge de mesure radiale b) échantillon après pose de la membrane Viton®

Une fois ces jauges collées, l'échantillon est placé dans la membrane Viton® (Figure 35.b) puis placé dans la cellule en contact avec le piston. Le vide est fait dans l'échantillon puis l'huile de confinement est injectée et une faible pression de confinement est appliquée. On sature alors l'échantillon par sa base à l'aide d'une huile minérale (la Marcol 52) qui est inerte vis à vis de la roche et assure de ne pas avoir de réaction chimique pouvant altérer la roche.

L'utilisateur programme ensuite le déroulement de l'expérience. Il peut ainsi définir comment sont contrôlées les différentes pressions appliquées à l'échantillon, programmer des cycles de charges/décharges axiales et définir des paliers de pression de confinement. Une fois cette programmation réalisée, l'essai se déroule jusqu'à la rupture de l'échantillon.

II.3-A-c) Paramètres mesurés dans le cadre de notre étude

Afin de décrire le comportement mécanique de notre matériau, une étude a été menée sur des échantillons sains, altérés 3 fois et altérés 6 fois. Cette étude se base sur la détermination des paramètres élastiques et de la contrainte à la rupture. Les paramètres choisis sont le module d'Young *E* et le coefficient de Poisson ν, définis par les relations suivantes pour un essai uniaxial :

$$\mathrm{E} = \frac{\Delta\sigma_a}{\Delta\varepsilon_a} \qquad (16)$$

et

$$\nu = -\frac{\Delta\varepsilon_r}{\Delta\varepsilon_a} \qquad (17)$$

Avec, σ_a la contrainte axiale, ε_a la déformation axiale et ε_r la déformation radiale.

Nous avons par ailleurs cherché à comparer les modules statiques K_0 (module d'incompressibilité) et G (module de cisaillement) compilés pour des carbonates de différente gammes de porosité et des carbonates altérés suivant le protocole de cette thèse (Bemer et Lombard, 2010). A cette fin, nous les avons déterminés à partir des formules suivantes :

$$\mathrm{K}_0 = \frac{\Delta p'}{\Delta\varepsilon_v} \quad (18) \text{ et } G = \frac{1}{3}.\frac{\Delta q}{\Delta\varepsilon_d} \quad (19) \text{ avec } \varepsilon_v = \varepsilon_a + 2.\varepsilon_r \text{ et } \varepsilon_d = \frac{2}{3}.(\varepsilon_a - \varepsilon_r)$$

Par définition pour un matériau isotrope on a les relations 20 et 21 entre les modules *E* et ν_0 d'une part et K_0 et G d'autre part :

$$\mathrm{E} = \frac{9.\mathrm{K}_0.G}{3.\mathrm{K}_0 + G} \quad (20) \text{ et } \nu = \frac{3.\mathrm{K}_0 - 2.G}{6.\mathrm{K}_0 + 2.G} \quad (21)$$

II.3-B)Protocole de la campagne d'essais

Les niveaux de confinement choisis pour cette étude sont P_c = 6, 11 et 16 MPa. Les essais sont réalisés en conditions drainées à une pression de pore P_p = 1MPa. Les déformations sont calculées à partir de la réponse de jauges collées directement sur l'échantillon (rappel : Figure 35). Notre protocole comprend trois étapes schématisées sur la Figure 36 :

- un cycle de charge / décharge de la contrainte axiale à Pc constante égale 2 MPa, dans le domaine de réversibilité, qui permet de déterminer les modules élastiques E et ν pour l'ensemble de nos échantillons (I);
- une montée en pression hydrostatique jusqu'à la pression de confinement choisie (II) ;
- un chargement triaxial à la pression de confinement fixée, jusqu'à la rupture de l'échantillon (III).

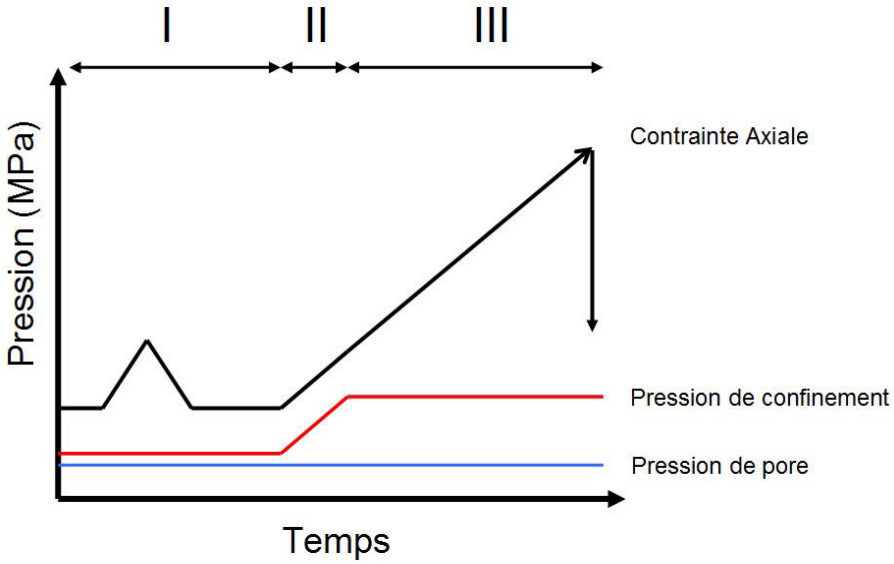


Figure 36 : Schéma explicatif de nos essais mécaniques sous presse.

Chaque échantillon est préalablement sélectionné d'après la méthode décrite dans la partie II.1-A). La détermination des seuils de rupture lorsque celle-ci se fait dans le domaine fragile est aisée. On prendra comme critère dans ce cas là, la valeur maximale de la contrainte déviatorique. Il s'est avéré cependant, que pour les échantillons altérés et aux confinements de 11 à 16 MPa nos échantillons sortaient du régime fragile de rupture pour rentrer dans des régimes de rupture plus compactant. Dans ce cas là, il n'y a pas de maximum de la contrainte déviatorique et il n'est pas aisé de déterminer cette valeur de rupture.

Il est alors nécessaire de trouver un critère pour estimer la rupture de ce type d'essai.

Ce critère a été établi sur la base du fonctionnement de la presse. La presse étant pilotée en force, la régulation de son taux de chargement se fait à l'aide du capteur de pression situé sous l'échantillon. Cette régulation conduit à une vitesse de chargement de 0,1 Tonne/min pour nos tailles d'échantillons. Cependant, dans le cas d'une rupture fragile, l'ouverture de la bande de cisaillement entraîne une perte de signal au niveau du capteur de pression à la base de l'échantillon. Le mode de contrôle impose à la presse d'augmenter la vitesse de chargement pour retrouver la valeur de consigne en force. La soudaineté de l'activation de la bande de cisaillement entraîne une réponse quasi instantanée de la presse. Dans le cas d'une rupture dans un domaine compactant, la formation d'une bande de cisaillement localisée n'existe pas et les déformations subies par l'échantillon sont plus diffuses (micro fracturations, écrasement de la porosité et des grains, bande de compaction) (Baud e*t al.*, 2000a ; Fortin *et al.*, 2007, Zhu *et al.*, 2010 ; Vajdova *et al.*, 2012). Dans ce dernier cas la course du piston va alors s'accélérer de façon exponentielle jusqu'à atteindre un équilibre dans sa vitesse de course pour maintenir la force sur l'échantillon (qui entre dans une phase de compaction). Nous estimons alors que l'instant correspondant à la rupture dans les domaines compactant se trouve à l'intersection des tangentes à la partie élastique du chargement et à la partie où la vitessse de la presse atteint sa limite de fonctionnement, comme on le voit dans Figure 37 sur le graphique présentant la vitesse d'avancée de la presse en fonction du temps. A l'aide de ce temps nous déterminons la contrainte à la rupture.

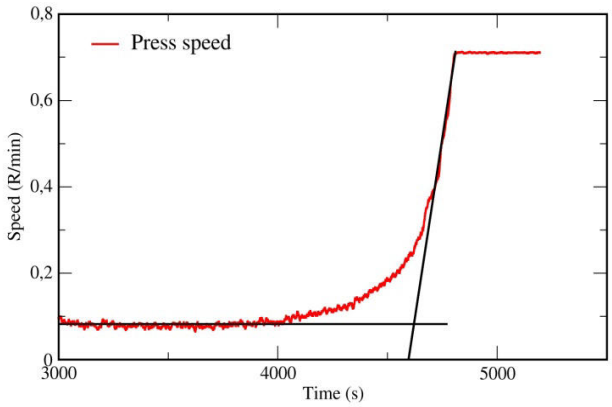


Figure 37 : Exemple d'estimation de la rupture dans le cas d'une rupture en régime non fragile.

II.4-La méthode de CIN

Suite à la description des évolutions microstructurales et du comportement macro mécanique sous l'effet d'une altération homogène, nous avons appliqué des méthodes novatrices de

mesures de champs à différentes échelles. Par la mise en œuvre de telles méthodes, nous souhaitons mettre en évidence l'impact de ces modifications structurales sur la réponse mécanique des échantillons altérés. Celles-ci permettent en effet, l'initiation de localisation et la quantification des niveaux de déformations pendant un chargement mécanique couplée à une observation microstructurale.

Pour comprendre les principes de la corrélation d'images exposés dans cette section, il est nécessaire de faire quelques rappels sur ce qui compose une image. Une image est la quantification numérique d'un signal physique acquis via un système d'acquisition dédié, dont l'interprétation dépend du principe de fonctionnement du dispositif. Chaque pixel (ou voxel en trois dimensions) possède une valeur qui est déterminée par la fonction image de l'image appelée niveau de gris. La taille de l'image (son nombre de pixel) est fixée par la résolution du capteur optique utilisé (cas d'une observation optique), des paramètres du balayage dans le cas du microscope électronique à balayage, ou encore des paramètres de reconstruction retenus pour la microtomographie. Cette taille peut éventuellement être modifiée au moment de l'enregistrement de l'image (par moyenne ou interpolation).

Comme nous l'avons vu dans la partie **I.3-A)** le principe de la corrélation d'image numérique est la détermination d'un champ de déplacement à différents niveaux de sollicitation mécanique, par la comparaison d'images d'une zone d'intérêt acquises à ces diverses étapes de chargement. A partir de ce champ de déplacement, il est possible de calculer un champ de déformation. Cette détermination repose sur l'acquisition d'images surfaciques ou volumiques d'un échantillon à l'état initial puis à différents états de chargements mécaniques choisis. Les images ainsi obtenues vont servir de jalons de la déformation au cours du chargement et seront comparées à l'image initiale pour déterminer la déformation totale entre la configuration initiale et la configuration actuelle. Il est également possible de comparer deux images acquises à deux états de chargement distincts pour évaluer une déformation incrémentale.

Afin d'obtenir le champ de déplacement, nous avons utilisé le logiciel CMV développé au LMS et au laboratoire Navier.

II.4-A) Acquisition du champ de déplacement

Le principe de la méthode repose sur l'identification de petits domaines dont la distribution des niveaux de gris (« marqueurs ») est identique entre l'image de référence et les images

déformées. L'hypothèse de convection de ce contraste local par la transformation mécanique permet d'interpréter les positions de ces domaines dans les diverses images comme les positions de points matériels sur le système étudié. L'image est discrétisée par une grille de points, en général régulièrement espacés, dont le nombre est défini par l'utilisateur (points rouges sur la Figure 38). On définit alors des domaines carrés dits de corrélation dont le pixel central correspond à ces points rouges. Il est habituel (mais non imposé) de choisir une taille de domaine correspondant au pas de la grille, de sorte que les domaines voisins se touchent mais ne se recouvrent pas. Ainsi, l'ensemble des pixels des images est exploité par l'analyse et le déplacement en deux positions voisines est évalué de manière indépendante (car basé sur des pixels distincts). Dans ces conditions, la taille des domaines, i.e. le pas de la grille, dépendra de la volonté de l'utilisateur d'avoir, ou bien un calcul plus local des déplacements, associés à une bonne résolution spatiale, mais plus fortement impacté par le bruit des images, ou bien un calcul moins local des déplacement mais dont le bruit est mieux moyenné.

Chaque pixel du domaine de corrélation dans l'image de référence est identifié par sa valeur de niveau de gris et sa position dans l'image. La recherche de domaine homologue dans l'image déformée se fait avec le logiciel CMV en deux temps. Dans un premier temps une recherche « au pixel » près est menée. Elle consiste à explorer plusieurs positions du domaine de corrélation dans l'image déformée, centrées sur les pixels situés dans un « domaine de recherche » et à retenir celle qui minimise un coefficient de corrélation prenant en compte les coordonnées et la valeur de niveau de gris des pixels composant les domaines dans l'image déformée et dans l'image initiale. Ce coefficient mesure la ressemblance entre domaines de corrélation dans l'image de référence et l'image déformée. Ce principe est résumé dans la Figure 38.

Cette position de pixel est ensuite affinée par une optimisation « subpixel », reposant sur une interpolation des niveaux gris de l'image déformée et utilisant un algorithme de descente de gradient. On obtient au final la grille de l'image déformée avec pour chaque pixel central les nouvelles coordonnées exprimées en pixels, mais non entières. On note qu'il est possible de « déformer » les domaines de corrélation au cours de la transformation, mais que compte-tenu des déformations très faibles analysées, l'hypothèse de transformation rigide locale au sein des domaines de corrélation est souvent suffisante.

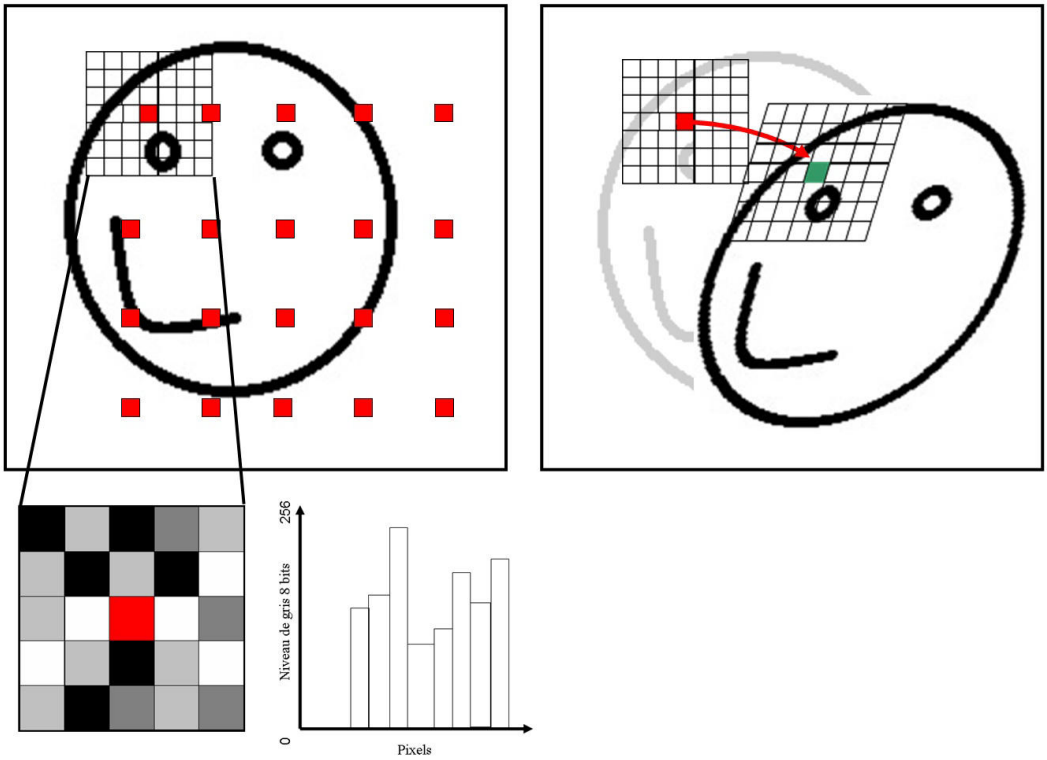


Figure 38 : Illustration des recherches de champ de déplacement par corrélation d'images

II.4-A-a) Éléments mathématiques d'obtention du champ de déplacement

Comme nous l'avons vu, l'objectif est d'obtenir les coordonnées des points (numéro *i*) constituants la grille initiale ($\underline{X}_i$) dans l'image déformée ($\underline{x}_i$) pour obtenir le champ de déplacement. Ces deux coordonnées sont reliées par la transformation mécanique Φ subie par notre matériau selon la formule :

$$\underline{x}_i = \underline{\phi}(\underline{X}_i) \qquad (22)$$

Les images (référence et déformée) sont définies pour chaque pixel par leur niveau de gris à l'aide des fonctions *f* et *g* pour l'image de référence et l'image de l'échantillon déformé respectivement. Dans le cas idéal où les deux images sont acquises dans des conditions permettant de supposer la conservation du niveau de gris lors de la transformation, on a, pour toute position X de l'image de référence :

$$g(\underline{\Phi}(\underline{X})) = f(\underline{X}) \qquad (23)$$

Cette conservation est cependant quasi impossible à obtenir, notamment sous MEB ou en microtomographie, et l'on peut alors retenir une relation de conservation relâchée, s'écrivant :

$$g(\underline{\Phi}(\underline{X})) = a.f(\underline{X}) + b + g' \qquad (24)$$

avec a et b les évolutions du contraste et de la brillance et g' le bruit aléatoire des images d'origine variée

Une estimation Φ_0, valable localement au sein d'un domaine de corrélation, de la transformation réelle Φ (inconnue) est obtenue par la minimisation d'un critère de corrélation. Le critère utilisé par le logiciel CMV est associé au principe de conservation du niveau de gris relâché (24) et autorise ainsi des variations de la brillance et de la luminosité, uniformes sur les domaines de corrélation, éventuellement variables à l'échelle de l'ensemble de l'image. Le coefficient de corrélation C utilise dans CMV est dit centré normé et s'exprime selon la formulation suivante (Doumalin, 2000) :

$$C(\phi_0) = 1 - \frac{\sum_{i \in D} \left[g\left(\phi(X_i)\right) - g_D \right] \times \left[f(X_i) - f_D \right]}{\sqrt{\sum_{i \in D} \left[g(\phi(X_i)) - g_D \right]} \times \sqrt{\sum_{i \in D} \left[f(X_i) - f_D \right]}} \qquad (25)$$

Où, D est le domaine de corrélation défini sur l'image de référence, $f(X)$ et g(x) les niveaux de gris respectifs des domaines de pixels de l'image de référence et de l'image déformée, f_D et g_D les moyennes des niveaux de gris sur D. Le but est de minimiser C par rapport à un jeu de paramètres qui décrivent la transformation locale approchée Φ_0, la minimisation porte sur 2 (ou 3 en 3D) composantes de translation (bien que des formulations plus complètes soient disponibles).

La première étape « au pixel près » consiste à rechercher les parties entières de ces composantes (exprimées en pixel). L'interpolation des niveaux de gris des domaines de l'image déformée va permettre d'atteindre une résolution subpixel dans la seconde étape. Cette interpolation (Figure 39) est bilinéaire, bicubique ou biquintique et permet d'obtenir la position des points de notre grille à une valeur non entière de pixel. Les détails sur ces méthodes d'interpolation peuvent être obtenus dans les annexes de la thèse de Doumalin, (2000).

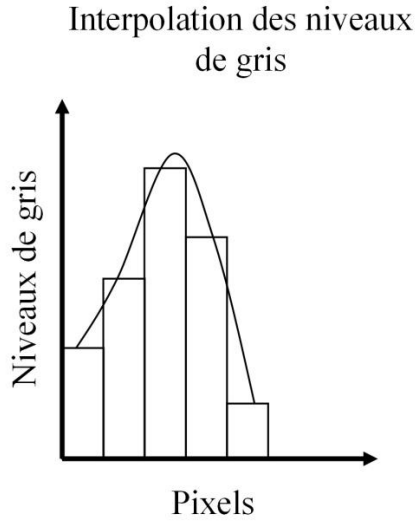


Figure 39 : Représentation de l'interpolation des niveaux de gris.

Une fois les coordonnées des points de la grille connues dans les images déformées, il est possible d'obtenir le champ de déplacement $\underline{u}$ de ces points dans le plan d'observation :

$$\underline{u}(\underline{X}_i) = \underline{x}_i - \underline{X}_i \qquad (26)$$

II.4-A-b) Passage à la 3D

La philosophie d'approche de cette méthode en trois dimensions reste la même. On rappellera donc ici simplement la formulation du coefficient de corrélation et l'on donnera en Figure 40 un exemple de schéma permettant une meilleure compréhension de la déformation d'un domaine composé de voxels (pixel en dimension 3). On notera que dans cette représentation le domaine de corrélation est déformé par Φ qui n'est pas une simple translation.

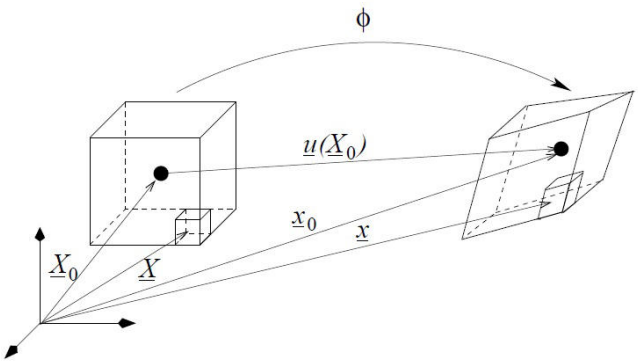


Figure 40 : Déformation du domaine de corrélation dans le cas de la CIN 3D, d'après Bornert (2004).

Le coefficient de corrélation utilisé lors de l'approximation "au voxel près" en 3D peut s'écrire:

$$C(\phi_0) = 1 - \frac{\sum_{\underline{X} \in D} (f(\underline{X}) - \overline{f}_D) \times (g(\phi(\underline{X})) - \overline{g}_D)}{\sqrt{\sum_{\underline{X} \in D} (f(\underline{X}) - \overline{f}_D)^2 \times \sum_{\underline{X} \in D} (g(\phi(\underline{X})) - \overline{g}_D)^2}} \qquad (27)$$

avec $\underline{X}$ représentant les voxels de D, f et g les niveaux de gris des images de référence et déformée, et $\overline{f}_D$ et $\overline{g}_D$ leurs moyennes sur D et Φ_0(D). Tout comme pour la version 2D, l'expression du coefficient de corrélation permet de s'affranchir des variations globales de contraste et luminosité. La seule différence avec la version 2D de ce coefficient de corrélation est l'ajout d'une dimension à travers D, le domaine en voxels.

Le calcul de ce minimum est affiné pour descendre à la résolution "subvoxel" à l'aide d'une méthode de descente de premier gradient, comme dans le cas 2D. Cette approche s'avère plus robuste qu'une méthode de Newton-Raphson proposée par ailleurs dans la littérature (Bruck *et al.*, 1989), bien que potentiellement moins rapide. Elle est détaillée dans Bornert *et al.*, (2004).

La méthode de corrélation ne diffère ainsi pas énormément pour l'obtention du champ de déplacement en trois dimensions par rapport à sa formulation en 2D. Seul le temps de calcul augmente fortement avec l'ajout de la troisième direction d'espace, tout comme la taille des volumes traités (plusieurs gigaoctets par image contre quelques dizaines de mégaoctets pour les images en deux dimensions).

II.4-B)Obtention de la déformation

Nous allons dans cette partie décrire la méthode d'obtention de la déformation locale à partir des mesures de déplacement précédemment décrites. Certains aspects de la méthode ne sont pas développés dans cette partie et le lecteur pourra se référer à (Salençon., 2005; Allais *et al.*, 1994) pour plus de précisions.

II.4-B-a) Calcul des déformations en 2D

Une fois le champ de déplacement obtenu à l'aide de la formule 26 pour tous les points de la grille, on peut déterminer les déformations locales et globales de l'échantillon. La mécanique des milieux continus classique introduit le tenseur gradient de la transformation :

$$F = \frac{\partial \Phi}{\partial X} \qquad (28)$$

Ce gradient de transformation F représente l'ensemble des transports dans le voisinage de X de tous les vecteurs infinitésimaux dX tels que :

$$dx = F(X).dX \qquad (29)$$

On mesure alors dans notre cas les déformations à l'aide du tenseur des déformations de Green-Lagrange E défini par :

$$E(X) = \frac{1}{2}(F^T F - \mathrm{I}) \qquad (30)$$

Avec, I le tenseur identité de second ordre et F^T la transposé du tenseur F.

Dans le cas de matériaux présentant des faibles déformations (notre cas), on utilisera le "tenseur des petites déformations" qui est une expression linéarisée de E par rapport aux composantes de F-I, supposées petites devant l'unité.

$$\varepsilon = \frac{1}{2}(F^T + F) - \mathrm{I} = \frac{1}{2}\left((\frac{\partial u}{\partial X})^T + \frac{\partial u}{\partial X} \right) \qquad (31)$$

L'application de cette expression à nos champs de déplacement issus de la CIN doit faire face à une difficulté. En effet ces champs de déplacement ne sont connus que de manière discrète et réaliser une dérivée n'est donc pas possible directement. Pour contourner ce problème, cette dérivée est remplacée par une différence finie. La formule générale de la différenciation finie selon la base de mesure ΔL d'une fonction unidimensionnelle *f* sur une série de points discrets est :

$$\left(\frac{df(X)}{dX} \right)_{\Delta L} = \frac{f(X + \Delta L/2) - f(X - \Delta L/2)}{\Delta L} \qquad (32)$$

Si les points sont espacés de façon régulière de ΔL, on peut alors calculer cette formule à partir d'une mesure discrète de *f*. Cette définition correspond à la moyenne spatiale sur le domaine D(X) = [X - ΔL/2, X + ΔL/2] du gradient classique, on obtient alors :

$$\left(\frac{df(X)}{dX} \right)_{\Delta L} = \frac{f(X + \Delta L/2) - f(X - \Delta L/2)}{\Delta L} = \frac{1}{\Delta L}\int_{X-\Delta L/2}^{X+\Delta L/2} \frac{df}{dX}(\upsilon)d\upsilon = \left\langle \frac{df}{dX} \right\rangle D(X) \qquad (33)$$

Cette formule peut être généralisée aux quantités tensorielles, définies sur un espace bi-dimensionnel, dont nous avons besoin pour caractériser les déformations de surface. Le gradient de déformation locale au point X ainsi est défini comme la moyenne du gradient sur

une surface S(X) centrée au point X et peut être transformé en intégrale de contour par l'application du théorème de Green :

$$F(X) \approx \langle F \rangle_{S(X)} = \frac{1}{|S(X)|} \int_{\partial S(X)} \Phi(v) \otimes n(v) dl_v = F^s(x) \qquad (34)$$

où S(X) est le domaine autour du point X, |S(X)| est l'aire de ce domaine, ∂S(X) le contour fermé de S(X) qui en pratique passe par les points de mesures et n la normale sortante de ce contour. La base de mesure utilisée pour la détermination de F au point X est donc cette surface S(X) et dépend des besoins de l'utilisateur. On appelle cet ensemble des points voisins et leur position un schéma d'intégration. Quatre schémas d'intégration sont possibles pour l'évaluation de la déformation locale et leur aspect est présenté dans la Figure 41. Le choix du schéma d'intégration influencera directement la taille de la base de mesure et donc l'aspect local de la mesure du champ de déformation. Plus le schéma d'intégration est large moins la mesure de déformation sera locale mais plus le signal sera moyenné et donc la précision de la mesure sera meilleure.

Pour le calcul de la déformation moyenne sur la zone d'analyse, on utilise la même relation en considérant un contour de la zone étudiée défini par des points de corrélation situés en périphérie. La déformation moyenne ne dépend que du déplacement de ces points périphériques, et est indépendante de la translation des points intérieurs.

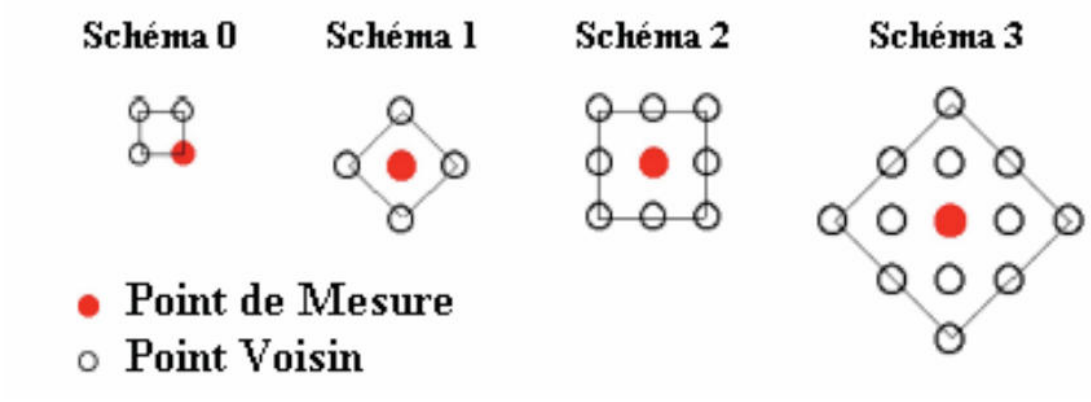


Figure 41: Différents schémas d'intégration possibles en corrélation d'image 2D pour évaluer le gradient local de la transformation d'après Dautriat (2009)

Cette formule ne permet cependant pas d'obtenir d'informations sur la composante hors plan de notre déformation (selon l'axe z) mais uniquement les composantes xx, xy, yx et yy du tenseur gradient de la transformation. Pour obtenir les composantes en z du tenseur, il est nécessaire de faire d'autres hypothèses. La première est de supposer que l'axe normal au plan

(x,y) est un axe principal de déformation et la seconde qu'il n'y a pas de rotation hors plan, donnant ainsi $F_{xz} = F_{yz} = F_{zx} = F_{zy} = 0$.

Pour calculer ε_{zz}, l'utilisateur peut choisir entre trois hypothèses supplémentaires dans CMV :

-déformation plane, $\varepsilon_{zz} = 0$,

-déformation isochore $\varepsilon_{zz} = -(\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy})$

-déformation axisymétrique, $\varepsilon_{zz} = \varepsilon_1$ si $|\varepsilon_1| < |\varepsilon_2|$, et $\varepsilon_{zz} = \varepsilon_2$ sinon, avec ε_1 et ε_2 les déformations principales dans le plan xy.

Une fois les six composantes du tenseur des petites déformations obtenues (dont deux, ε_{xz} et ε_{yz}, sont supposées nulles avec les hypothèses precédentes), on peut représenter la déformation déviatorique par un scalaire. Dans CMV, on utilise la déformation équivalente de von Mises qui quantifie la distorsion de la matière et s'exprime par la formule suivante :

$$\varepsilon_{eq} = \frac{2}{3}\sqrt{e:e} \quad e = \varepsilon - \frac{1}{3}tr(\varepsilon)\underline{\underline{i}} \qquad (35)$$

où e est le déviateur de la déformation. On note que sous l'hypothèse de transformation axysimétrique, la relation obtenue est

$$\varepsilon_{eq} = \frac{2}{3}\left|\varepsilon_1 - \varepsilon_2\right| \qquad (36)$$

si bien que cette quantité mesure alors l'intensité du cisaillement dans le plan d'observation (second invariant plan).

II.4-B-b) Calcul des déformations en 3D

Comme indiqué dans Bornert *et al.*, (2004) l'extension tridimensionnelle de la méthode de calcul par CIN des déplacement et déformations locales a historiquement été limitée principalement par les capacités de calculs et de mémoire des ordinateurs. Ces limitations ne sont maintenant plus d'actualité et il est (toutes proportions gardées avec la 2D) rapide d'analyser une grille 3D de 64.000 points avec un volume de 1,5 gigaoctets. Si la détermination par corrélation du champ de déplacement en 3D est très similaire à l'analyse en 2D, les relations précédentes pour calculer les déformations sont moins faciles à mettre en œuvre, car les intégrales de contour se ramènent en 3D à des intégrales de surface qu'il est plus délicat de manipuler. L'équation (34) se généralise en effet selon la formule suivante :

$$\underline{\underline{F}}(X_0) \approx \langle F \rangle_{\Omega_{\underline{X_0}}} = \frac{1}{\left|\Omega_{\underline{X_0}}\right|} \int_{\Omega_{\underline{X_0}}} \underline{\underline{F}}(\underline{X}) dX = \frac{1}{\left|\Omega_{\underline{X_0}}\right|} \int_{\partial\Omega_{\underline{X_0}}} (\underline{X} + \underline{u}(\underline{X})) \otimes \underline{n}(\underline{X}) ds_X \qquad (37)$$

dans laquelle X_0 représente un point de la grille, $\Omega\underline{x}_0$ un domaine associé au point, $\partial\,\Omega\underline{x}_0$ représente la surface du domaine $\Omega\underline{x}_0$ dont la normale sortant est $\underline{n}(\underline{X})$ et $|\,\Omega\underline{x}_0|$ la mesure du domaine $\Omega\underline{x}_0$. Mais il est délicat de discrétiser l'intégrale de surface obtenue. D'autres procédures sont ainsi mises en œuvre.

En pratique, les mesures par CIN sont transférées à un logiciel de calcul aux éléments finis (Cast3M) : les centres des fenêtres de corrélation définissent les nœuds d'un maillage formés d'éléments à 8 nœuds. Le calcul de la déformation repose sur la dérivation des fonctions de forme trilinéaires de cet élément. Les composantes du gradient peuvent être calculés en chaque point de Gauss ou moyennées par éléments (calcul exact d'intégration). Dans le second cas le résultat correspond a la relation (37) ci-dessus, dans laquelle $\Omega\underline{x}_0$ est le domaine occupé par l'élément fini considéré. La base de mesure associé au calcul des déformations est ainsi la taille de l'élément fini, soit en pratique aussi le pas de la grille. Le logiciel Cast3M permet aussi de moyenner le gradient sur toute la zone d'analyse.

Une fois les composantes du gradient calculées, le tenseur des déformations de Green-Lagrange peut être calculé comme pour la situation 2D, par les relations suivantes :

$$\underline{\underline{E}} = \frac{1}{2}(\underline{\underline{F}}^T \underline{\underline{F}} - I) \qquad (38)$$

$$\underline{\underline{\varepsilon}} = \frac{1}{2}(\underline{\underline{F}}^T + \underline{\underline{F}}) - \underline{I} = \frac{1}{2}\left(\frac{\partial \underline{u}}{\partial \underline{x}} + \left(\frac{\partial \underline{u}}{\partial \underline{x}}\right)^T\right) \qquad (39)$$

Un énorme avantage de la formulation tridimensionnelle est qu'il n'y a plus d'hypothèses à donner pour obtenir les déformations dans les trois directions puisque l'information est obtenue par l'acquisition 3D des volumes : les évolutions des trois composantes du champ de déplacement selon les trois directions de l'espace sont fournies par l'analyse CIN.

II.4-B-c) Sources d'erreurs en CIN

De nombreuses sources d'erreurs existent en analyse par CIN. Elles peuvent être classées de la manière suivante

- la CIN opérant comme un filtre, ayant en entrée des images et en sortie des champs de déplacement, tout bruit sur les données d'entrée induit un bruit sur les données de

sortie. Le bruit d'image, c'est-à-dire la fluctuation aléatoire des niveaux de gris des pixels, plus ou moins intense selon le type d'image et les conditions d'acquisition, induit donc un bruit sur la mesure de déplacement. La CIN reposant sur l'utilisation du contraste des images, il faut que ce dernier soit présent est bien marqué. Les erreurs seront d'autant plus grandes qu'il y a moins de variations des niveaux de gris dans les fenêtres de corrélation. Des analyses plus poussées (Hild et Roux, 2006) montrent que l'erreur en CIN, sous des conditions de translation pure, est proportionnelle au ratio du bruit d'image par le contraste, intégré sur la fenêtre de corrélation.

- L'algorithme de CIN peut lui-même induire ses propres erreurs. L'erreur de fonction de forme est liée à l'inaptitude de la transformation Φ_0 supposée, à décrire la transformation réelle à l'échelle de la fenêtre de corrélation (Bornert *et a.*, 2009). Dans le cas des très faibles déformations des roches analysées dans ce mémoire, elle est faible et peut être négligée (voir aussi Wang *et al.*, 2013 pour une discussion à ce sujet dans le cas de l'analyse de roches argileuses). Une autre erreur intrinsèque à l'algorithme de corrélation est associée à l'optimisation sub-pixel reposant sur une interpolation des niveaux de gris, qui peut-être plus ou moins efficace pour restaurer la texture réelle des images. Elle induit une erreur, dite « systématique », car fortement corrélée avec la partie fractionnaire des composantes de déplacement mesurées, exprimées en pixel (Dautriat *et al.*, 2011b, Amiot *et al.*, 2013). Elle induit une sur ou une sous-estimation du déplacement évoluant périodiquement avec le déplacement lui-même, qui se traduit par des bandes de déformation périodique (« moiré ») dans les cartes de déformations. Cette erreur systématique est d'autant plus critique que les déformations sont faibles, ce qui est le cas de nos analyses. Il convient donc de la maîtriser.
- Le troisième ensemble d'erreur regroupe les erreurs géométriques, associées au fait que les images, notamment 2D, sont des projections plus ou moins complexes, d'une réalité tri-dimentionnelle. Les imperfections de ces projections, et leurs évolutions éventuelles dans le temps, peuvent induire des déformations apparentes sur les images 2D qui pourraient être à tort interprétées comme des déformations de la matière observée. Parmi ces erreurs, celles induites par les variations de grandissement peuv-être critiques pour mesurer précisément la déformation. Ce variations sont elles mêmes induites par les mouvements relatifs de la caméra par rapport à l'échantillon.

- Une dernière source d'erreurs est l'évolution du contraste d'image au cours de la déformation, du fait de l'évolution du matériau (fissuration par ex) ou de son marquage (décollement du mouchetis). L'hypothèse de convection du contraste local par la transformation mécanique sous-jacente à la CIN ne s'applique alors plus.

Ces sources d'erreurs induisent un champ de déplacement mal estimé, affecté d'une erreur aléatoire ou systématique. Ces erreurs se propagent par les formules de dérivation utilisées aux composantes du gradient et de la déformation. Il faut noter que les erreurs induites sur les composantes de la déformation par les erreurs sur le déplacement dépendent fortement de la base de mesure choisie. Plus précisément, Doumalin a quantifié les erreurs sur la déformation locale en fonction du schéma d'intégration utilisé : Tableau 1

Tableau 1: Estimation des gains et des pertes en fonction du schéma d'intégration choisis d'après Doumalin (2000)

Schéma d'intégration	0	1	2	3
Gain de précision	1	2	3,26	4,61
Perte du caractère local	1	$1/\sqrt{2}$	1/2	$1/2\sqrt{2}$

Moyenner plus fortement permet donc de mesurer des déformations plus faibles, mais moins bien résolues spatialement. Dans le cas du calcul d'une déformation moyenne, le même principe s'applique, et l'on peut estimer l'écart-type de l'erreur sur la composante xy du gradient relatif à la base de mesure L_y dans la direction y induite par une erreur aléatoire (supposée uniforme) sur le déplacement selon la direction x, d'écart-type σ_u par:

$$\sigma_{F_{xy}} \approx \frac{2}{\sqrt{N}} \frac{\sigma_{u_x}}{L_y} \qquad (40)$$

Dans cette relation, N est le nombre de paires de mesures de déplacement indépendantes utilisées pour calculer la composante du gradient. Pour une déformation moyenne L est de l'ordre de 100 pixels ou voxel et N de l'ordre de la centaine, alors que pour une mesure locale, L est de l'ordre du pas (ou de quelques pas) de la grille (soit 10 a 100 pixels ou voxels) et N est proche de l'unité. L'erreur aléatoire affecte donc beaucoup moins le calcul de la déformation moyenne que celui de la déformation locale (facteur 100 à 1000 entre les deux).

II.5-Description des trois dispositifs d'acquisition d'images et leurs limites

Nous présentons dans cette section, les différents dispositifs permettant l'acquisition d'images au cours d'un chargement mécanique. Les images ainsi obtenues sont ensuite traitées au moyen de méthodes exposées précédemment. Trois dispositifs ont été utilisés au cours de cette thèse. Les deux premiers permettent l'obtention d'images en deux dimensions aux échelles macroscopique et microscopique sous conditions de chargement uniaxial. Ces types de dispositifs ont déjà été décrits dans le chapitre consacré à la bibliographie. Le troisième dispositif original a fait l'objet d'un développement et d'une calibration poussée lors de ce travail de thèse. Il permet l'application d'un chargement triaxial sur un échantillon et simultanément son imagerie par microtomographie RX. Nous allons présenter dans cette section les trois montages que nous avons utilisés. Les méthodes d'estimation d'erreurs inhérentes aux différentes techniques d'imagerie, ainsi que les résultats obtenus aux différentes échelles seront abordées dans les sections IV.2-B), V.1-B) et V.3-.

II.5-A) Imagerie optique

Pour des raisons de disponibilité du matériel, nous avons été contraints d'utiliser deux dispositifs expérimentaux très similaires au cours de cette thèse. Les dimensions d'échantillons sont les mêmes, seules les caractéristiques des caméras et des capteurs CCD ont changé.

Le premier montage permet d'acquérir une suite d'images de la surface d'un échantillon cylindrique de 35 mm de haut par 36 mm de diamètre, usiné spécifiquement pour cette expérience. On réalise deux surfaces planes ou méplats de 26 mm de large diamétralement opposées sur les échantillons testés permettant l'imagerie des deux surfaces par deux caméras.

Le capteur de la caméra imageant la partie « macro » de l'acquisition a une dimension de 24 mm x 36 mm et image la surface à un grandissement de 1, les pixels (16 mégas) ont alors une résolution de 7,4 µm. La mise au point sur la surface est effectuée une fois en début d'essai et n'évolue plus pendant le chargement mécanique de l'échantillon. Le capteur numérique de la caméra dite « micro » est aussi de 16 mégas pixels et image une zone de 1,5 x 1,5 mm avec une résolution de 0,74 µm. Cette caméra est équipée d'un système automatisé lui permettant de régler sa position en X et Y mais aussi de faire sa mise au point par un mouvement selon

l'axe Z. Cet équipement permet de réaliser une automatisation de le mise au point selon un algorithme de maximisation de contraste moyen présenté et utilisé par Yang *et al.*, (2010b). L'utilisateur peut définir plusieurs zones d'intérêt qu'il veut imager avec un pas de temps choisi, la caméra sera alors déplacée pendant le chargement pour acquérir les images des chaque zone. Le positionnement précis de la camera se fait par une méthode rapide de corrélation d'images entre l'image initiale et l'image à acquérir.

Le second montage est similaire au précédent mais au moment de son utilisation, l'automatisation de la camera « micro » n'était pas encore disponible.

L'éclairage de la surface doit être uniforme et ne pas provoquer des effets de brillances sur les surfaces imagées. Pour nos expériences nous avons utilisé un éclairage à l'aide de LED bleues. Ces LED sont positionnées directement au niveau de la lentille de l'objectif des caméras « micro » de façon latérale. L'éclairage nécessaire à la camera « macro » se fait par deux spots de LED placés à gauche et à droite de la caméra. L'ensemble du dispositif est placé dans une pièce souterraine afin de ne pas subir d'éventuels changements de luminosité induits par la lumière extérieure.

L'échantillon est placé sous une presse électromécanique opérant en condition uniaxiale, les presses appliquent une force maximale de 100 kN. Le chargement est contrôlé en déplacement et défini à 1 µm/s pour l'ensemble de nos tests. Le chargement mécanique se fait de façon continue avec une vitesse d'acquisition d'une image toutes les dix secondes pour le premier montage et toutes les deux secondes pour le second montage. On obtient le déplacement du piston mobile par la conversion du nombre de tours du vérin de la presse en déplacement vertical.

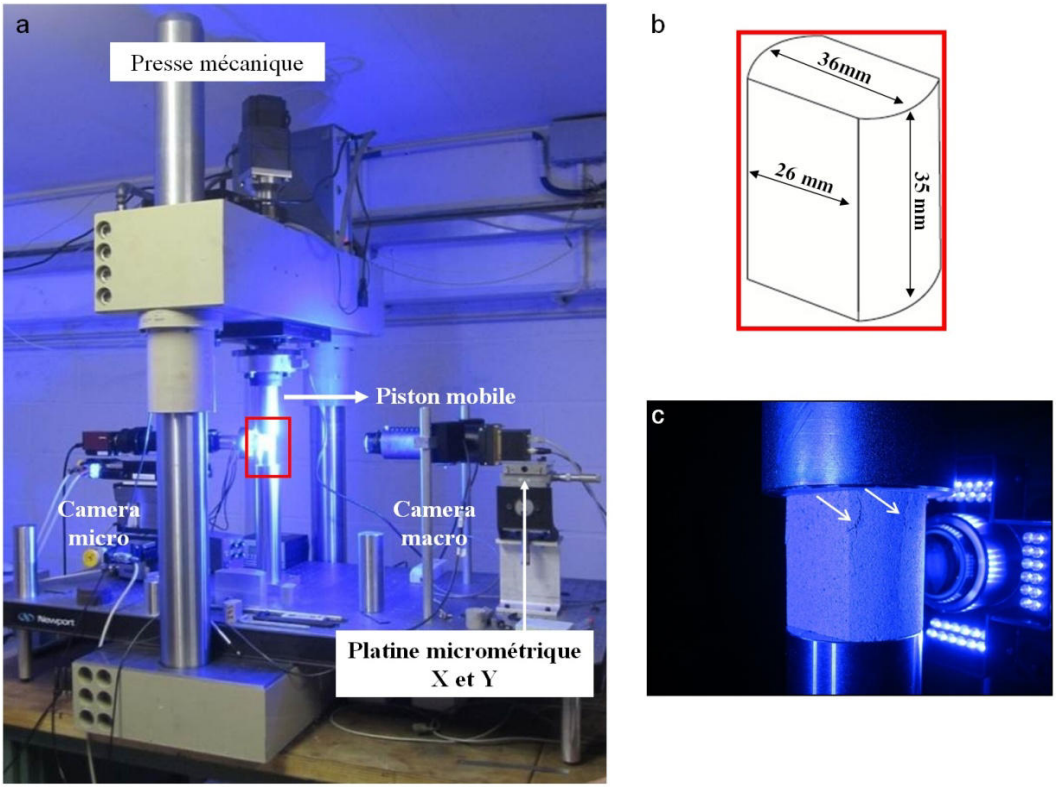


Figure 42 : a) Montage de CIN macroscopique avec la presse mécanique et les deux caméras hautes résolution b) géométrie de l'échantillon pour ce type d'essais c) image d'un échantillon après rupture, les flèches indiquent la fracture.

II.5-B) Imagerie au MEB

Le montage utilisé pour l'acquisition au MEB repose sur l'utilisation d'un banc de chargement uniaxial spécialement développé pour être placé dans la chambre d'un MEB. Les échantillons utilisés pour ces essais sont des parallélépipèdes d'environ 14 mm de long et 7 mm d'arrête. La surface qui sera imagée pendant l'essai est soigneusement polie afin d'obtenir une surface la plus lisse possible dans les limites des anfractuosités induites par la porosité. Cette préparation est nécessaire afin de minimiser les effets d'ombre pouvant nuire au contraste local de l'image et entraîner une mauvaise corrélation d'images. Ce polissage permet par ailleurs d'assurer une meilleure continuité de la couche d'or que l'on dépose à la surface de notre échantillon pour permettre une évacuation des électrons puisque notre carbonate n'est pas naturellement conducteur. Les détails sur cette préparation de la surface observée et l'influence de cette préparation sur la corrélation d'images seront développés dans la partie 0IV.2-A).

Cette préparation semble aisée au premier abord mais se révèle difficile lors du polissage des échantillons altérés. L'altération peut en effet entraîner une perte de cohésion entre les grains

lors de la manipulation d'échantillons de petite taille. Lors du polissage, il est fréquent que des grains se désolidarisent, ce qui provoque des arrachements de matière à la surface. De plus, il a été observé que les micrograins de calcite constitutifs de notre matériau peuvent obstruer la porosité lors de cette préparation et nuire au contraste local de l'image obtenue. Cette étape ne doit pas être négligée car elle impacte directement la qualité des images obtenues et donc la qualité de la corrélation d'images.

Les essais mécaniques dans l'enceinte du MEB se déroulent de façon différente des essais optiques. En effet, la prise d'images haute résolution au MEB est longue et nous devons procéder par des paliers de chargement successifs pendant lesquels les images sont acquises. Le chargement est contrôlé en déplacement que l'on stoppe lorsque l'on a atteint valeur de force ciblée. On effectue alors la prise des images de notre surface à différentes échelles de grossissement. Il faut environ sept minutes par image pour une résolution de 4096 x 3775 pixels et un temps de pause de 10 ms/pixel.

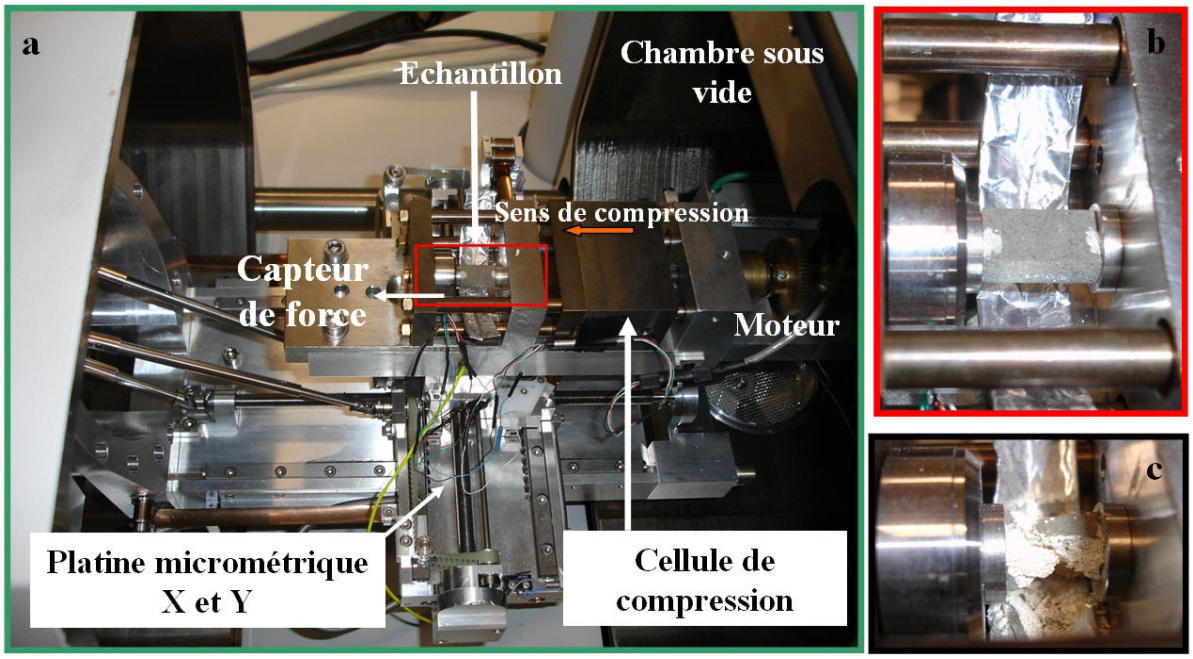


Figure 43 : a) Montage d'acquisition CIN 2D dans l'enceinte du MEB b) Positionnement d'un échantillon avant essais c) exemple d'échantillon après rupture.

Comme le montrent la Figure 42.c et la Figure 43.c, une des limites de ces deux méthodes est la possibilité que la rupture se propage en dehors de la surface imagée. Lorsque cela se produit, il devient difficile de lier les événements précurseurs de la localisation observés en surface aux mécanismes de rupture de l'échantillon. Une autre limitation est la nécessité de conserver une surface observable ce qui ne permet au mieux que d'associer la CIN à des

essais uniaxiaux ou biaxiaux. Ces méthodes permettent cependant d'identifier des mécanismes de localisation de la déformation avant la rupture fragile, et ce, à une échelle très fine.

II.5-C) Imagerie à l’aide d’une cellule triaxiale et de la microtomographie

L’un des objectifs de cette thèse est d’aller au delà des limitations des méthode d’imagerie 2D par le développement d’une cellule triaxiale miniaturisée permettant d’imager un échantillon de roche en trois dimensions au cours de l’essai, à l'aide d'un microtomographe.

Cette cellule triaxiale a été développée par l'IFPEN et a été spécialement conçue pour prendre place dans la chambre d’un microtomographe de type Nanotom. Pour rendre possible cette utilisation, les spécifications de la cellule étaient très strictes. La hauteur de l'ensemble du montage composée du vérin et le corps de la cellule ne devait pas faire plus de 490 mm de haut. Par ailleurs, afin de ne pas endommager la platine rotative du micro tomographe, l'ensemble du dispositif ne devait pas excéder 3 kg. Enfin, le matériau utilisé pour le corps de cellule devait à la fois supporter un confinement à l'eau distillée de 15 MPa et un chargement axial de 10 kN tout en minimisant l'absorption des rayons X. Le matériau choisi à cet effet a donc été un alliage d’aluminium (5083- F Norme EN 755-2) avec une paroi de 2 mm d'épaisseur.

Dans sa configuration originelle, la contrainte axiale est appliquée à l’échantillon par l’intermédiaire d’un vérin actionné par un moteur pas à pas. Ce vérin permet l’application d’une force maximale de 10 kN et permet une course maximale de 10 mm. Le pilotage de ce vérin est réalisable depuis un ordinateur et ne nécessite pas d’accéder à la chambre du microtomographe pendant l’essai mais cette fonctionnalité n’était pas opérationnelle pendant la thèse. Le pilotage peut être effectué en déplacement contrôlé, mais également en taux de chargement contrôlé, par l’intermédiaire d’un capteur de force placé au contact du piston mobile. La programmation par une interface Labview du moteur pas à pas permet également la définition d’une séquence de paliers de chargement successifs.

Cependant, lors des essais préliminaires de mise en place de l’ensemble vérin/cellule de confinement dans l’enceinte du microtomographe, il a été noté que le poids excessif de cet ensemble empêchait une rotation satisfaisante de la platine, ce qui s’est traduit par un endommagement de cette dernière. Le temps nécessaire à son remplacement et le coût élevé de cette pièce du microtomographe, nous a conduit à chercher une solution alternative à

l'utilisation de ce vérin. Celui-ci a donc été remplacé par un vérin à chargement manuel actionné à l'aide d'une vis micrométrique. Le poids restreint de ce vérin de substitution, nous a tout de même permis la réalisation d'une campagne d'essais triaxiaux. Le capteur de force a été adapté à ce nouvel élément, le contrôle de nos essais a donc été effectué par incrément de force sans connaissance exacte du déplacement du piston.

Notre cellule est composée de trois pièces principales visibles Figure 44.b. Le corps de la cellule est creux (Figure 44.b.1) et permet de venir insérer le piston fixe (Figure 44.b.3) par le haut et le piston mobile (Figure 44.b.2) par le bas. Un échantillon cylindrique de 10 mm de diamètre pour 20 mm de longueur (Figure 44.d) est placé dans une membrane permettant de l'isoler du fluide de confinement (de l'eau). Le confinement est contrôlé par une pompe Quizix à deux pistons.

Dans le cadre de cette thèse, nous avons réalisé uniquement des essais drainés et sans fluide interstitiel. Ces conditions nous permettent de nous rapprocher au mieux des essais 2D puisqu'il n'y a pas de fluide interstitiel non plus. Cependant, la présence de fluide interstitiel aurait été intéressante pour obtenir une meilleure comparaison entre les essais triaxiaux menés sur les macros échantillons et les résultats de CIN. Mais de nombreux retards pris par la conception de la presse triaxiale miniaturisée et sa mise en service (panne du micro tomographe et endommagement de sa platine de rotation lors des premiers essais) ne nous ont pas permis de réaliser ces essais. Nous n'avons pu mener que la première campagne nous permettant de déterminer nos conditions d'acquisition et de reconstruction pour la CIN sur des échantillons secs.

Cependant, ce dispositif a également été conçu pour permettre de travailler en condition saturées et permettre la mise en écoulement de fluides sous pression au sein d'un échantillon. Un circuit dédié à la pression de fluide, contrôlé par une autre pompe Quizix et régulé par une "back pressure" permet la réalisation d'essais en conditions drainées. Ce dispositif permet également des mesures de perméabilité via 3 capteurs de pressions différentielles montés en parallèle et dont les gammes de mesures permettent de travailler sur des matériaux de différentes porosités et perméabilités. L'ensemble des circuits du dispositif et leur contrôle est visible sur l'interface utilisateur Labview (Figure 45).

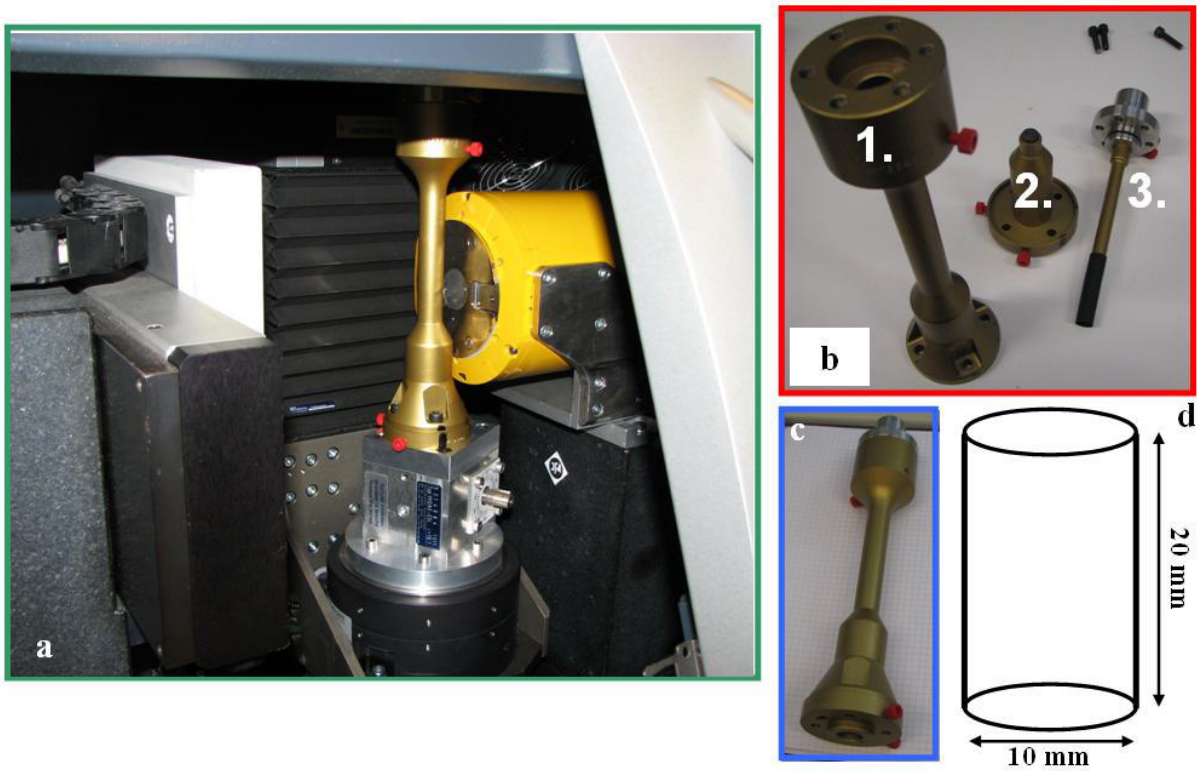


Figure 44 : a) enceinte du microtomographe avec la micro cellule et le vérin de chargement b) micro cellule démontée, on y voit en 1. le corps de la cellule, en 2. le piston qui permet d'appliquer le pression axiale et en 3.le piston rigide et la membrane c) cellule montée et d) dimension des échantillons

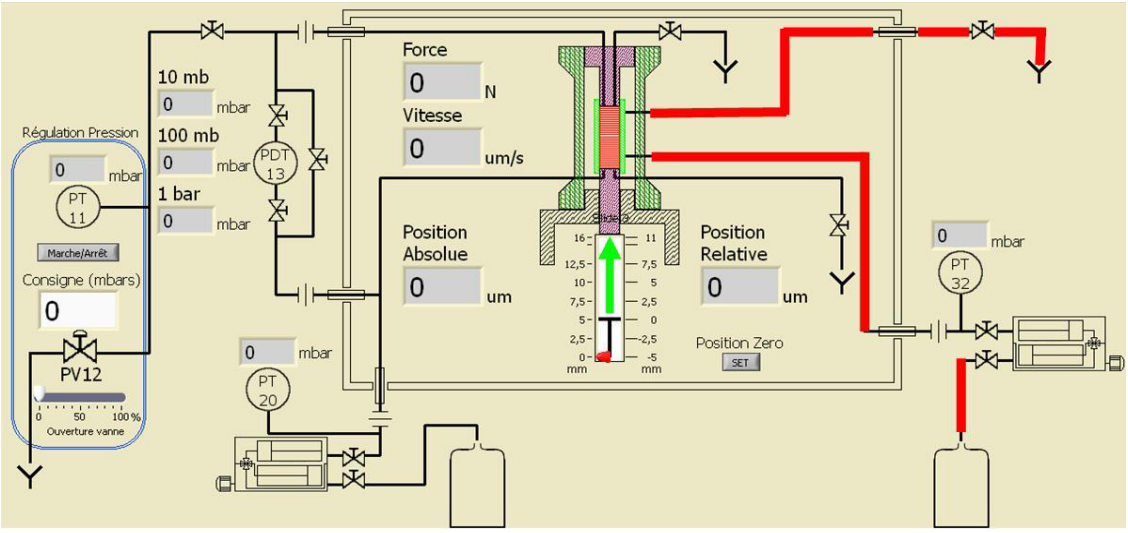


Figure 45 : Schéma du dispositif dans l'enceinte du microtomographe. En rouge est représenté le circuit contrôlant la pression de confinement, la flèche verte représente le chargement par le piston mobile et le circuit noir correspond au contrôle de la pression de pore et la mesure de perméabilité.

Une fois l'échantillon en place, le chargement mécanique est appliqué de la même façon que pour les essais *in-situ* dans l'enceinte du MEB. L'acquisition des radiographies nécessaires a la reconstruction d'un volume nécessite environ 2h30 dans nos conditions d'acquisition : 1800

coupes, soit une coupe tous les 0,2°. Le chargement se fait donc par paliers successifs pendant lesquels le volume est imagé.

La difficulté lors des essais sous confinement tout comme pour les essais triaxiaux macroscopiques, a été d'estimer le moment de la rupture de l'échantillon lorsque l'on n'est plus dans un régime de rupture fragile et s'il était justifié de continuer le chargement ou non. En effet, comme on peut le voir dans la Figure 46.a, à aucun moment n'est observée une chute nette de la force traduisant l'ouverture d'une bande de cisaillement contrairement à la Figure 46.b qui présente un chargement uniaxial pour lequel la rupture est nettement visible. Il a donc été nécessaire après les premiers essais montrant ce soucis d'estimation de la contrainte à la rupture de trouver une méthode pour arrêter l'essais et ne pas charger trop vite nos échantillon à l'approche de cette rupture pour mieux visualiser les endommagements qui précèdent la rupture. Ce développement sera explicité dans le chapitre consacré aux résultats de cette méthode.

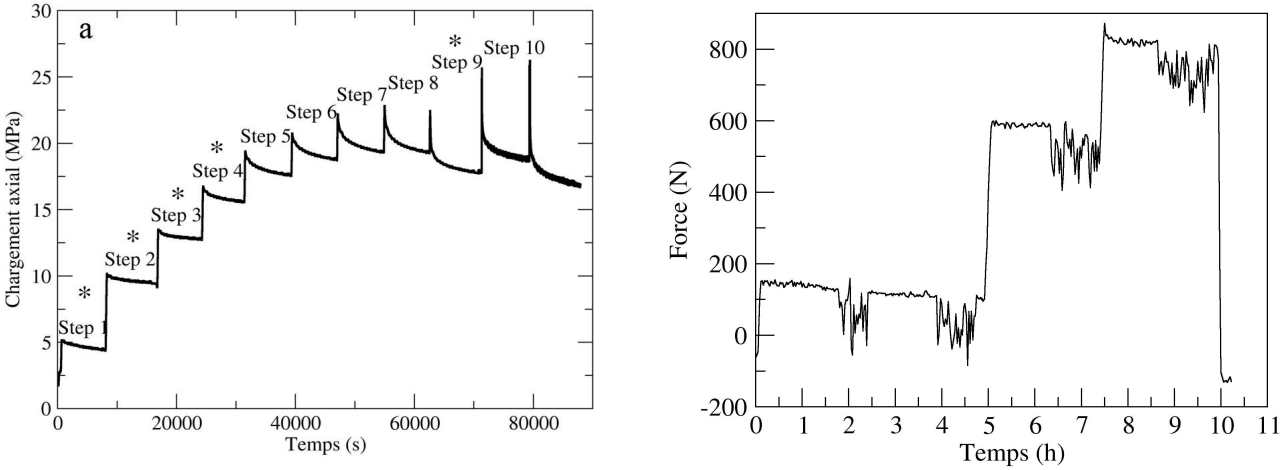


Figure 46 : a) exemple de chargement à 5 MPa de confinement sur un échantillon altéré six fois dont le comportement n'est pas fragile, la rupture n'a pas été clairement identifiée lors d'acquisition CIN 3D b) Courbe de chargement sain dans le même dispositif expérimental

III Évaluation des caractéristiques pétrophysiques et microstructurales de notre roche et leur évolution avec l'altération

Sommaire

III ÉVALUATION DES CARACTERISTIQUES PETROPHYSIQUE ET MICROSTRUCTURALES DE NOTRE ROCHE ET LEUR EVOLUTION AVEC L'ALTERATION.....99

III.1- LE CALCAIRE DE LAVOUX A L'ETAT SAIN 101

III.1-A) Etude microstructurale..... 102

III.1-A-a) Blocs de LGG..... 103

III.1-A-b) Bloc de LGF..... 106

III.1-B) Caractérisation pétrophysique..... 108

III.1-C) Caractérisation des propriétés d'écoulement 112

III.2- ÉVOLUTION DES PARAMETRES PETROPHYSIQUES ET DE LA MICROSTRUCTURE 114

III.2-A) Evolution de la porosité 114

III.2-A-a) Homogénéité de l'altération sur les macros échantillons 114

III.2-A-b) Etude de la porosité des échantillons fils après découpe..... 116

III.2-A-c) Evolution des courbes des propriétés RMN et IMHP 119

III.2-B) Evolution de la microstructure 121

III.2-C) Evolution de la perméabilité 125

III.2-C-a) Mesure unidirectionnelle de la perméabilité..... 125

III.2-C-b) Mesure bidirectionnelle de la perméabilité 126

III.3- MISE EN EVIDENCE DE L'EXISTENCE DE PARTICULES DECROCHEES APRES ALTERATION 127

III.3-A) Mesures indirectes de l'existence des particules fines 127

III.3-B) Visualisation des fines au sein du milieu poreux 130

III.3-B-a) Protocole d'altération miniaturisé 130

III.3-B-b) Méthode de soustraction d'images..... 133

III.1- Le calcaire de Lavoux à l'état sain

La partie bibliographique de ce manuscrit montre que les aquifères salins profonds sont des cibles privilégiées pour le stockage du CO_2, du fait de leur grande étendue spatiale et de leurs propriétés d'écoulement (forte porosité et perméabilité) qui facilitent l'injectivité. Par rapport aux roches gréseuses, les réservoirs carbonatés présentent de plus l'intérêt de permettre un stockage pérenne par minéralisation partielle du CO_2. Dans le bassin de Paris la formation géologique la plus étudiée est la formation du Jurassique moyen, le Dogger. Cette formation a été particulièrement étudiée dans le cadre d'une recherche concertée entre plusieurs organismes autour du projet PICOREF (BRGM, 2007). Pour cette thèse nous avions besoin d'un carbonate dont l'homogénéité microstructurale nous assurerait une bonne reproductibilité pour des essais mécaniques, tout en ayant des propriétés d'écoulement facilitant l'injectivité de l'acide. Nous avions le choix entre plusieurs carbonates disponibles à l'IFPEN : 1) le carbonate d'Estaillades provenant d'une carrière du Vaucluse, qui était le matériel d'étude de la thèse de Dautriat (2009), 2) le calcaire d'Euville provenant de la région de Provence, très utilisé dans la thèse de Nguyen (2012) pour étudier des altérations homogènes et 3) le calcaire de Lavoux étudié à l'IFPEN dans le cadre de l'ANR GéoCarbone-INJECTIVITE (Bemer et Lombard, 2010 ; Fleury *et al.*, 2007 ; Radilla *et al.*, 2010).

Finalement le calcaire de Lavoux a été choisi pour l'homogénéité de sa microstructure, nous assurant d'obtenir des échantillons représentatifs pour nos essais. De plus les travaux précédents cités ont permis la description des propriétés hydromécaniques de ce calcaire et leurs évolutions avec l'altération à l'aide d'un protocole basé sur l'utilisation d'un acide retard (que nous allons également utiliser). Enfin, la relative simplicité de l'organisation microstructurale permet à cette roche d'être assimilée à un empilement de sphères cimentées, facilitant l'élaboration d'un modèle de milieu équivalent (Dvorkin *et al*., 1994).

Nous nous attacherons au début de ce chapitre à décrire la microstructure de notre carbonate en suivant et en adaptant la classification de Lønøy, (2006). Nous étudierons la pétrophysique de notre roche à l'état sain à l'aide des méthodes décrites dans le chapitre dédié aux protocoles expérimentaux. La suite du chapitre décrit les évolutions de la microstructure, des propriétés pétrophysiques et d'écoulement après altération homogène, avec un intérêt particulier sur l'analyse des effluents après altération et sur l'imagerie *in-situ* des particules mobiles au sein de la porosité.

III.1-A)Etude microstructurale

Le calcaire de Lavoux se trouve dans la région de Poitiers, au sud-ouest du bassin Parisien. Le calcaire de Lavoux est daté du Callovo-Oxfordien et s'est déposé dans des conditions de récifs coralliens issus de « hauts fonds ». Ce calcaire appartient à la formation du Dogger qui s'étend sous le bassin parisien. Il est à l'affleurement dans la région de Poitiers comme on le voit sur la Figure 47, qui présente la coupe géologique du seuil du Poitou, limite entre le bassin parisien et le bassin aquitain. Les roches du Dogger dans cette région sont caractérisées par des calcaires oolithiques, classiques des zones de dépôts récifales (carte géologique de Poitiers, BRGM).

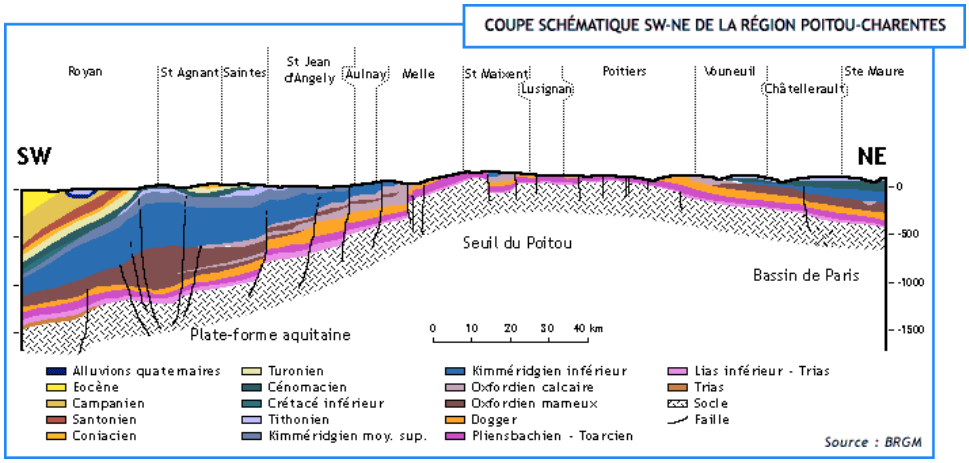


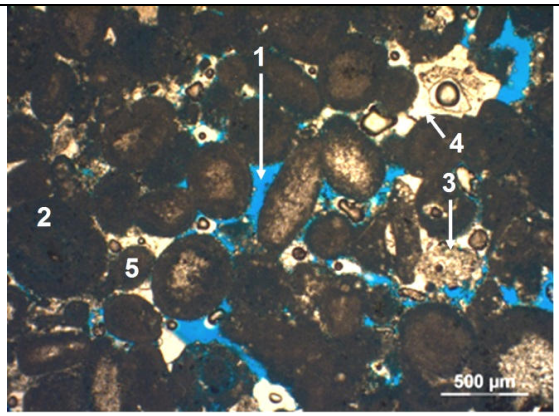
Figure 47 : coupe SW-NE du Seuil du Poitou mettant en évidence la position à la limite du bassin parisien du calcaire de Lavoux

Les premiers blocs étudiés étaient issus d'études antérieures menées à l'IFPEN cités dans l'introduction de ce chapitre. Ils étaient définis comme étant du "Lavoux Jaune à gros grains". Malgré un niveau d'homogénéité satisfaisant des échelles de la microstructure à celle du bloc, notre critère de sélection strict basé sur l'analyse au scanner médical entraîne une perte importante de matière issue d'un bloc. Nous avons été rapidement confrontés à un épuisement des blocs disponibles à l'IFPEN. Ainsi de nouveaux blocs ont été commandés à la carrière de la Vienne et approvisionnés. Malgré le type de calcaire demandé, nous avons observé que la microstructure apparente du nouveau calcaire était bien plus fine et la cimentation plus présente.

Sur la base des observations microstructurales, nous avons opté pour une nomenclature pour la suite de ce manuscrit. Les échantillons issus de notre première série de carottage et définis comme Lavoux à gros grains seront référencés « LGG » ; les échantillons issus de la seconde série seront quant à eux dénommés « LGF » pour Lavoux à grains fins. Il est à noter que le

LGF présente un niveau d'hétérogénéité à l'échelle de l'échantillon plus important que le LGG. On a observé que la répartition de la porosité n'était pas homogène sur les blocs. Malheureusement les blocs de carrières n'étant pas orientés, il n'est pas possible de savoir si cette distribution est dans le sens du litage où induite par un dépôt sédimentaire particulier comme une mégaride (visible dans les carrières de Bourgogne (Casteleyn *et al.*, 2010).

Les blocs de LGG sont labellisés J6 et J8 selon la nomenclature IFPEN. Le bloc de LGF est labellisé J9. La microstructure de ces blocs a été étudiée et décrite par les méthodes de microscopie sur lames minces et cathodoluminescence, par imagerie micro-tomographique RX, ainsi qu'au MEB. Sur la Figure 48 on peut voir deux lames minces en LPNA à un grossissement de 60x. Un ensemble de 25 images pour LGG et 21 images pour LGF ont permis de créer des panoramas (visibles en annexe 1) permettant de mieux appréhender la microstructure et les hétérogénéités. On voit sur ces panoramas qu'à l'échelle de quelques centimètres la variabilité de la microstructure est forte et il est difficile d'être exhaustif dans la description de cette microstructure. Cependant, les différences entre le LGG et le LGF sont bien mises en évidence.



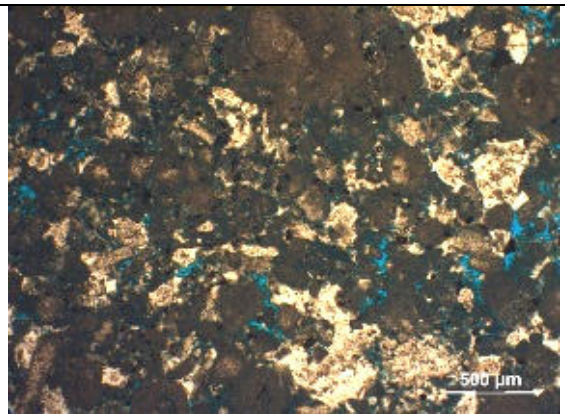


Figure 48: Microstructure des blocs LGG(a) et LGF(b) obtenues a partir de lames minces en LPNA à un grossissement de x60, La porosité est imprégnée par une résine époxy colorée en bleu. Les principaux éléments observés sont numérotés: 1) macroporosité 2) oolithe 3) Fragments d'echinoderme 4) Ciment syntaxial 5) Pellet

III.1-A-a) Blocs de LGG

Le LGG présente de la macroporosité rendue visible par la couleur bleue induite par l'imprégnation de l'échantillon à la résine colorée avant le polissage (Figure 48.a.1). On observe majoritairement des oolites microporeuses de 500 µm de diamètre moyen (Figure 48.a.2). La présence de bioclastes reste très anecdotique. Les plages de ciments syntaxiaux sont rares mais de grande taille et prennent naissance à la surface de fragments d'échinodermes (Figure 48.a.4 ; Figure 49.a). De rares plages de ciments ne semblent pas

avoir comme nucleus des fragments d'échinodermes mais la micrite composant les oolithes. Il n'a pas été observé de calcite de blocage très développée ou de ciment isopaque à la surface des oolithes. Enfin de rares pellets microporeux sont observés (Figure 48.a.5).

L'analyse par cathodoluminescence du LGG présentée dans la Figure 49.b nous montre une teinte principale dans les pourpres, classique en cathodoluminescence de la calcite. Une analyse plus fine du ciment syntaxial montre sept bandes de croissance, dont certaines ont une teinte plus jaune caractérisant une présence plus importante en manganèse (Mn^{2+}) dans le fluide lors de la cristallisation.

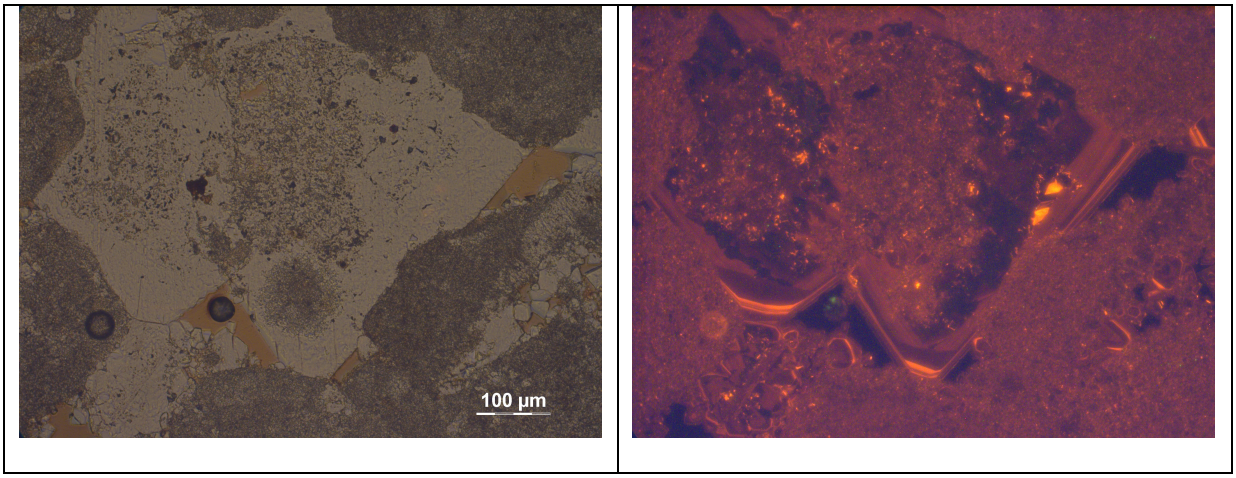


Figure 49 :a) ciment syntaxial en LPNA x100 b) même ciment syntaxial en cathodoluminescence

L'observation du LGG à l'aide du microtomographe confirme ces observations (Figure 50). Les niveaux de gris les plus foncés correspondent aux pores résolus par cette technique et associés à la macroporosité ; les niveaux de gris intermédiaires correspondent aux grains microporeux (un voxel intègre alors du vide et du solide) ; enfin, les niveaux de gris les plus clairs correspondent à la calcite pure. Il apparaît à cette échelle que le réseau de macropores est bien connecté et que la microstructure du LGG est relativement homogène. Les oolithes peuvent êtres regroupées en deux familles. La première est la famille des oolithes dont le nucleus est très microporeux, leur donnant un aspect très sombre en leur centre. La seconde famille est composée des oolithes ayant un nucleus fortement cristallisé (très blanc en microtomographie). Leur microporosité est moins homogène et se retrouve alors sous forme d'une microporosité concentrée dans des anneaux autour de ce nucleus. Ces différences entre les oolithes ont été décrites par Casteleyn *et al.*, (2010) et reliées au comportement mécanique de la roche par une étude acoustique.

Les ciments syntaxiaux sont localement visibles mais restent très dispersés et rares dans l'échantillon, le fragment d'échinoderme constituant leur nucleus est difficile à voir en

microtomographie (et au MEB), car la composition chimique et la structure cristallographique de ces fragments sont très proches de celle du ciment. On observe finalement, de grandes plages de macroporosité et une calcite de blocage présente comme un fin liseré discontinu autour des oolithes (Figure 50, flèche blanche).

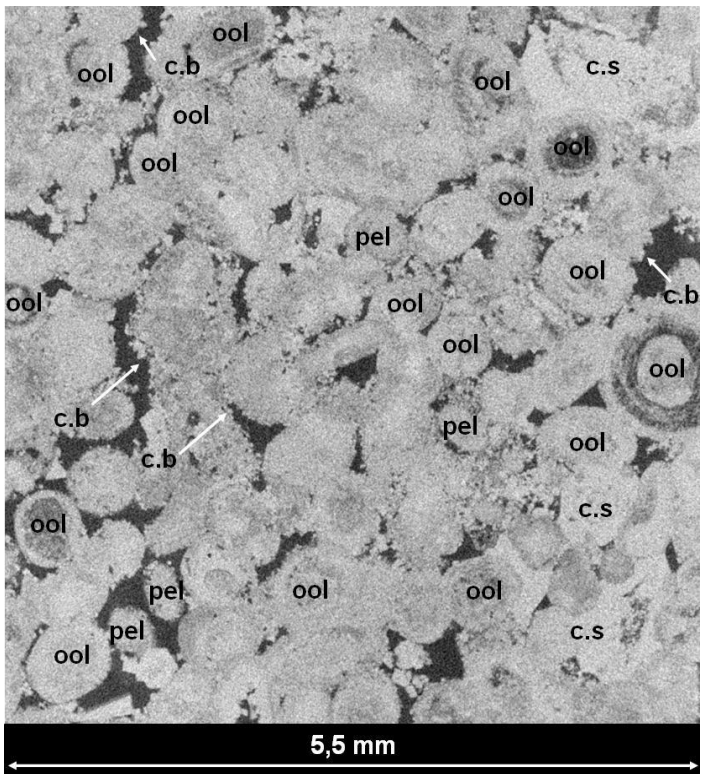


Figure 50 : image microtomographique du LGG à 5 µm de résolution avec : ool = oolithes ; bcl = bioclaste ; pel = pellets, c.s = ciment syntaxial et c.b = calcite de blocage

La Figure 51.a nous montre une vue générale au MEB du LGG, on y retrouve les mêmes caractéristiques que ce que nous avons décrit à l'aide des lames minces. L'utilisation du MEB nous a permis d'observer finement les rhomboèdres de calcite constitutifs de la calcite de blocage présents dans la macroporosité, ainsi que les rares plages de ciments syntaxiaux du LGG (Figure 51.b et c). A l'aide d'un grossissement plus important, nous avons pu identifier les éléments les plus petits de notre roche : il s'agit des grains de micrite composant les oolites (Figure 51.d). Cette micrite est constituée par de petits cristaux de calcite non automorphes de 1 à 6 µm de large. C'est cette micrite qui sert de *nuclei* à de petits rhomboèdres de calcite visibles dans la macroporosité de la roche que l'on qualifie de calcite de blocage, même si sa cristallisation n'est pas allée à son terme au point de bloquer totalement la porosité.

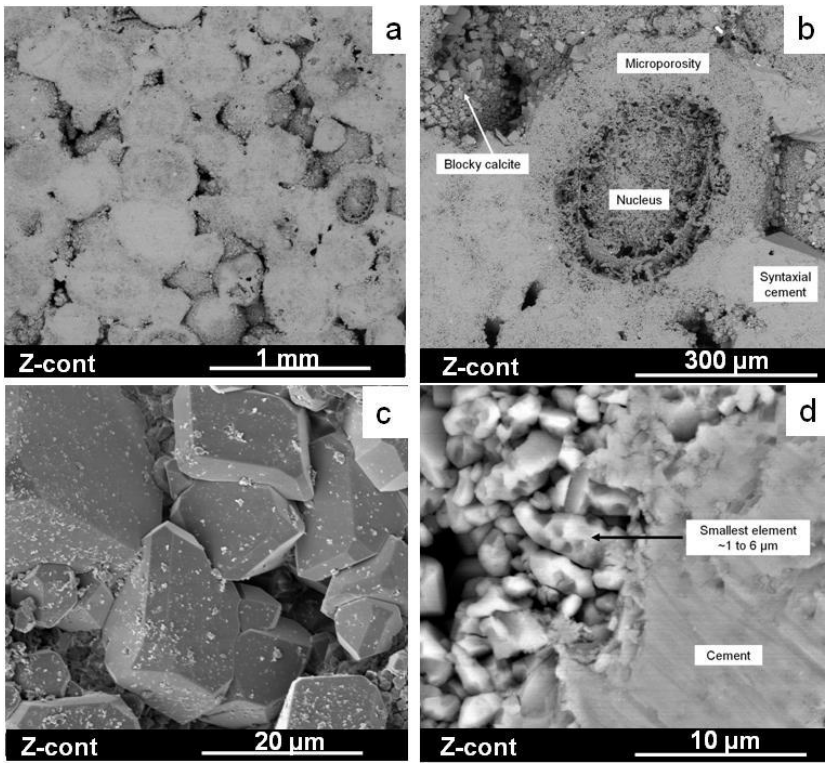


Figure 51: Microstructures classiques du bloc LGG, a) vue générale du LGG b) Détails de la structure des oolithes et des types de ciments rencontrés c) calcite de blocage d) Détail de la micrite constitutive des oolithes

III.1-A-b) Bloc de LGF

Le LGF présente une porosité plus fine, avec une macroporosité limitée (en bleue Figure 48.b), mais qui est compensée par une mésoporosité intergranulaire forte. La proportion d'oolithes est faible, mais ces dernières, visibles par leur nucleus et leurs bandes de croissance, demeurent microporeuses et ont un diamètre de 200 à 300 µm (Figure 48.b). Les grains majoritaires sont ici des pellets de calcite microporeux de petits diamètres (10 à 50 µm). La calcite de blocage est encore moins présente dans la porosité et on n'observe de façon quasi exclusive que des ciments syntaxiaux. On note par ailleurs une plus forte présence de fragments de bioclastes (bivalves, échinodermes et brachiopodes) très abîmés, induisant d'importantes hétérogénéités locales. La cathodoluminescence appliquée au LGF n'apporte pas d'informations nouvelles pour l'histoire diagénétique de la roche. Mais la faible taille des éléments composant cette roche rend difficile l'observation par cathodoluminescence.

L'observation des volumes microtomographiques visible dans la Figure 52 permet d'avoir une meilleure vue d'ensemble de la répartition et de la quantité des bioclastes pour le LGF. On observe que les ciments syntaxiaux sont répartis de façon plus homogène que pour le

LGG, mais leur taille est bien plus limitée du fait de la taille plus réduite de la macroporosité dans le LGF. La quantité d'oolithes est plus faible et la calcite de blocage n'est pas observée.

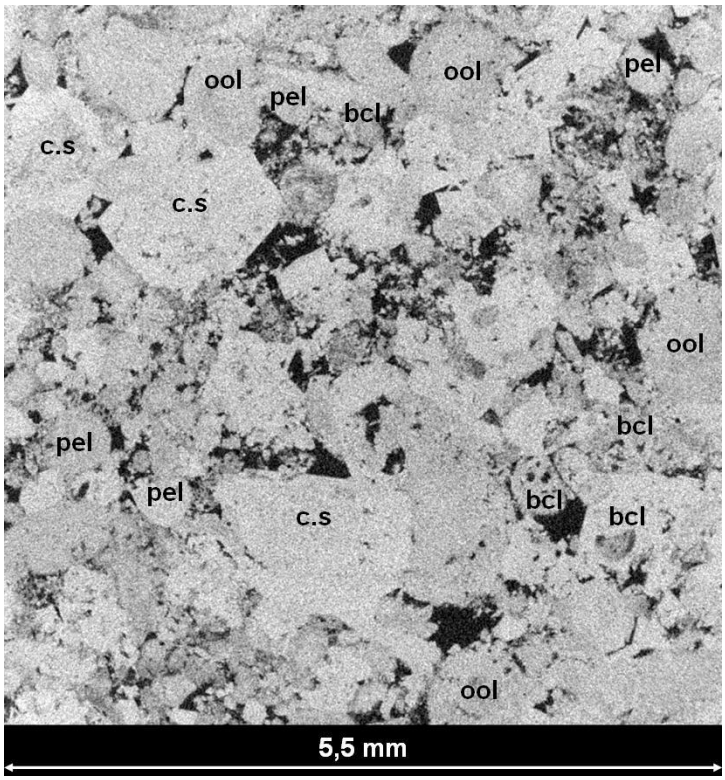


Figure 52 : image microtomographique du LGF à 5 µm de résolution avec : ool = oolithes ; bcl = bioclaste ; pel = pellets et c.s = ciment syntaxial

L'utilisation du MEB nous a permis de voir que la roche est micritisée à l'extrême dans le cas du LGF. Les hétérogénéités locales sont telles que trois plans sont nécessaires pour présenter l'ensemble des structures rencontrées (Figure 53.a, b, c). Les zones macro et meso poreuses de l'échantillon ne présentent pas ou peu de calcite de blocage contrairement au bloc LGG. On trouve de très grandes plages de ciments syntaxiaux comme on le voit dans la Figure 53.c. Des bioclastes sont aisément identifiables (flèche blanche Figure 53.a) mais la majorité est plus difficilement localisable qu'à l'aide du microtomographe car le polissage leur fait perdre leur structure interne et ils apparaissent sombres comme des ciments. Enfin, les oolithes ne sont plus majoritaires en comparaison des ciments syntaxiaux et des pellets.

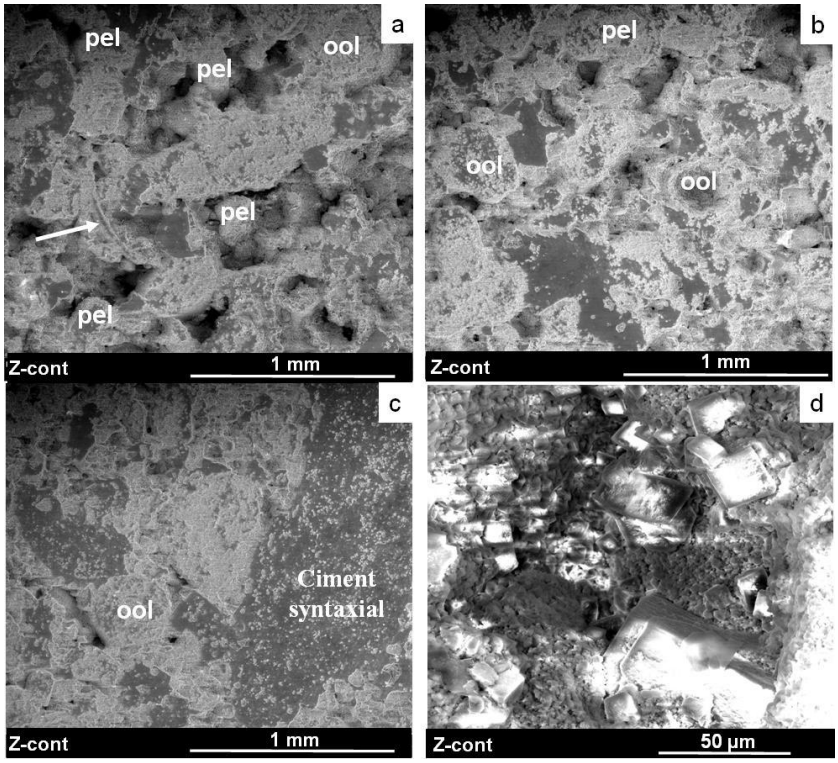


Figure 53 : a,b,c) vues générales du LGF d) détail de calcite de blocage avec pel = pellets; ool = oolithes

Ces observations montrent que ces blocs, bien que datés d'un même âge et prélevés au sein de la même carrière, ont des microstructures très différentes qui peuvent s'expliquer par une variation de dépôt stratigraphique horizontal. Le bloc de LGG représente un dépôt dans un environnement à agitation régulière dans une eau chaude, permettant la formation des oolites de grande taille (Purser, 1980). La faible quantité de bioclastes et le tri dans le type de grain situent ce dépôt proche de la barrière corallienne, là où les vagues sont régulières. Plus précisément, la grande taille des oolithes (~500 µm) localise ce dépôt à l'intérieur du shoal oolitique. Le bloc LGF présente une quantité très importante de bioclastes très altérés, une faible quantité d'oolites et une grande quantité de pellets. Ce type de dépôt est caractéristique d'un dépôt à l'intérieur du lagon (peu d'oolites et beaucoup de pellets), en bout de chenal (Rankey et Reeder, 2010).

III.1-B) Caractérisation pétrophysique

Comme nous l'avons expose dans la partie II.1-A), la première étape de notre méthodologie repose sur une présélection des échantillons. Ainsi, chaque bloc (30 cm x 30 cm x 20 cm pour le LGF) est entièrement foré et chaque carotte extraite est passée au scanner médical pour estimer la porosité moyenne de l'échantillon, afin de sélectionner ceux d'une porosité moyenne de 24% ±0,5%. Nombre des carottes ne rentrent pas dans cette catégorie, mais cette

étude systématique permet d'estimer la dispersion des valeurs de porosité au sein de chacun des deux blocs.

Le Tableau 2 présente la porosité moyenne et la dispersion observée pour chaque bloc. Le bloc LGF présente des valeurs de l'écart type et des extrema plus grandes, ce qui traduit une hétérogénéité plus importante. Ce tableau a été obtenu par des mesures effectuées sur 41 échantillons pour LGG et 75 échantillons pour LGF.

Tableau 2:Moyenne, écart type, valeur minimum et maximum de la porosité des blocs J6 et J9 obtenus par scanner médical

	φ moyen (%)	*Ecart type*	*Minimum*	*Maximum*	*Nombre d'échantillons*
LGG	**23,5**	**0,6**	**22,6**	**24,7**	**41**
LGF	**24,5**	**1,1**	**22,1**	**26,5**	**75**

Ces mesures scanner ont ensuite été confrontées aux mesures par injection de saumure lors du protocole d'altération pour les échantillons ayant été sélectionnés pour êtres altérés. Ces résultats sont représentés dans la Figure 54.

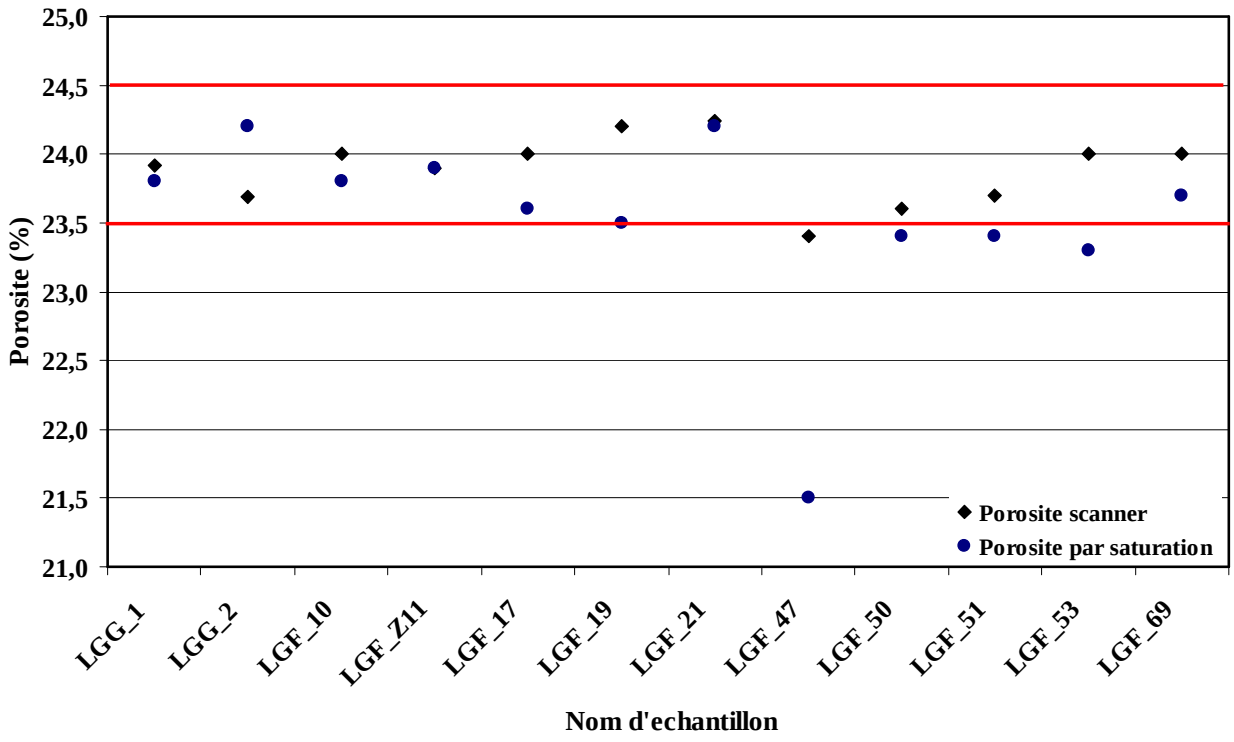


Figure 54 : Comparaison entre porosité à la saumure et la porosité scanner

On observe de façon *quasi* systématique que la valeur de porosité scanner est supérieure à celle obtenue par injection d'eau de 0,5% à 0,05%. (NB : La valeur LGG_2 sort de la tendance mais nous n'avons pas d'explication autre qu'un défaut de mesure du volume de l'échantillon initial). La différence peut être considérée comme une évaluation indirecte de la porosité non connectée de la roche. En effet, la mesure scanner permet d'accéder de façon moyenne à l'ensemble de la porosité présente dans la roche, tandis que la saturation à l'eau ne peut être effective que dans les zones connectées au réseau poreux. Cette valeur est conforme à celle donnée dans la littérature (Sterpenich *et al.*, 2009) sur un calcaire de Lavoux. Parmi les 41 échantillons de LGG, nous présentons deux échantillons détaillés dans la suite du manuscrit. Parmi les 75 échantillons de LGF, nous présentons les échantillons utilisés pour les essais mécaniques.

Nous avons ensuite caractérisé la porosité à l'aide de mesures RMN effectuées sur des échantillons de 15 mm x 15 mm sous échantillonnés dans les blocs. La Figure 55 montre deux résultats de temps de relaxation T2 pour un échantillon de LGG de porosité 23,9% et pour un échantillon de LGF de porosité 24,1%. Pour les deux échantillons, on remarque que la distribution est *quasi* unimodale. Cependant, la courbe en trait continu qui correspond à l'échantillon LGG présente une proéminence centrée vers 600 ms, ce qui dénote un petit pic convolué avec le pic principal centré vers 45 ms. La distribution des T2 de l'échantillon LGF ne présente qu'un seul pic, centré sur 60 ms. D'après Fleury et Soualem (2009) un seuil de T2 à 200 ms correspond à une porosité de 2 µm de diamètre établie sur un carbonate à double porosité. En plaçant cette limite sur nos courbes on observe que la quantité de macropores dans le LGF est très faible cependant, la distribution unimodale des temps de relaxation suggère l'existence d'une seule population de porosité connectée, ce qui n'est pas cohérent avec les observations microstructurales. Vincent *et al.*, (2011) ont effectué des mesures du signal RMN sur des échantillons de Lavoux à gros grains. Ils interprètent la signature unimodale en T2 comme un effet de couplage diffusif de l'eau présente dans l'échantillon entre les différentes porosités. Si les molécules d'eau peuvent être échangées librement par diffusion entre la macroporosité et la microporosité pendant le temps de relaxation RMN, la bimodalité du signal s'estompe au profit d'un seul pic dans la distribution des T2 (Figure 55). Cette hypothèse se confirme pour le LGG et LGF, puisque d'après la compilation de signaux RMN réalisés sur différents carbonates, Vincent *et al.*, (2011) montrent que la bimodalité est conservée seulement s'il y a un ciment isopaque ou une très forte cimentation autour de la microporosité, rendant les temps de diffusion d'un espace poral à l'autre très grand devant le

temps caractéristique du signal RMN. Notre roche ne présentant pas de ciment isopaque mais une calcite de blocage non continue et éparse, il est donc cohérent que nous ayons un signal unimodal. On notera cependant que le signal RMN de l'échantillon LGG suggère une bimodalité (proéminence à 600 ms), ce qui pourrait être le fait d'une très grande différence de taille entre la macroporosité et la microporosité. Ce petit pic convolué à 600 ms s'est retrouvé sur cinq autres analyses menées sur le LGG sain. A titre de comparaison la Figure 55.b présente un signal RMN bimodal obtenu à partir du calcaire d'Euville dans la publication de Vincent *et al.*, (2011).

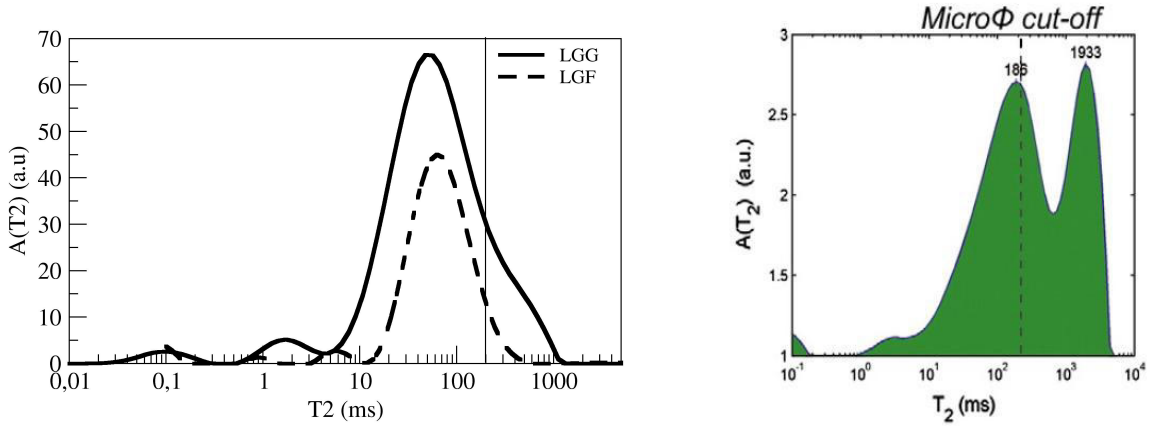


Figure 55 : a) Exemple de deux courbes RMN pour le LGG et le LGF b) courbe RMN du calcaire d'Euville d'après Vincent et al., (2011)

Pour compléter cette description du milieu poreux, la porosimétrie mercure nous informe sur la taille moyenne des seuils d'entrée de pore et leur répartition. La Figure 56.a présente deux exemples représentatifs de nos deux matériaux. Les courbes de pression capillaire montrent deux paliers, ce qui indique une répartition bimodale des diamètres d'entrée de pore pour les deux types de Lavoux. Pour une visualisation de la distribution des diamètres des seuils d'entrée de pore nous présentons dans la Figure 56.b les dérivées des courbes de pression capillaire. Pour l'échantillon de LGG on observe une famille d'entrée de pore dont le diamètre moyen est de 10 µm correspondant aux seuils d'accès de la macroporosité, ainsi qu'une famille d'entrée de pores avec une taille moyenne d'environ 0,7 µm correspondant aux seuils d'accès de la microporosité. L'échantillon de LGF présente une famille dont la taille d'entrée de pore est en moyenne de 4 µm et une famille similaire à celle du LGG pour la microporosité à 0,7 µm. Dans ce cas-ci, la famille des plus grands seuils correspondrait à l'accès à la mésoporosité observée à l'aide des lames minces. On a placé à 3 µm ce que nous considérons être la limite entre la microporosité et l'ensemble composé par la mésoporosité et la

macroporosité. Cette limite correspond à la résolution maximum du microtomographe, dont nous discuterons les résultats plus loin dans ce chapitre.

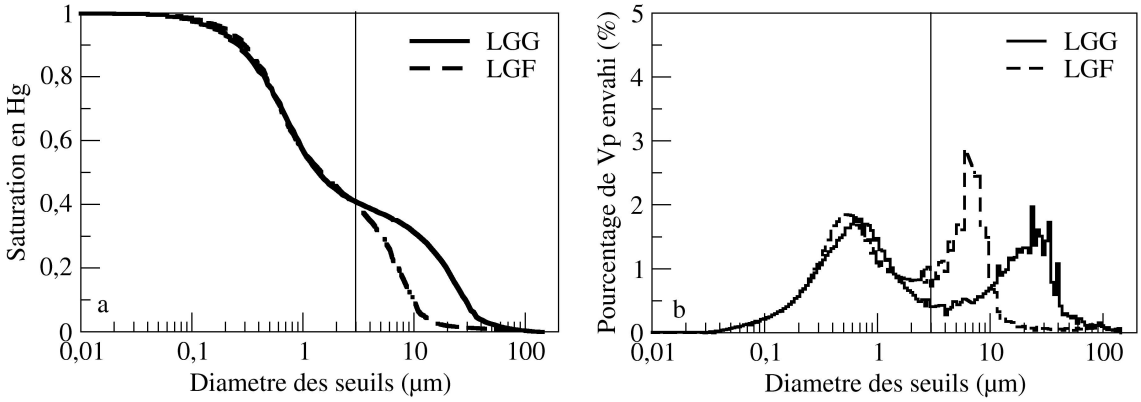


Figure 56 : a) courbe de saturation obtenue par porosimétrie mercure pour le LGG et le LGF b) courbe dérivée pour LGG et LGF à l'état sain

La porosimétrie mercure nous confirme donc la présence d'une porosité bimodale connectée. La forme des courbes de pression capillaire nous renseigne également sur la proportion des phases macro (ou meso) et microporeuse. En effet, il est possible à partir de ces courbes d'estimer le volume correspondant à la porosité accessible par des seuils de diamètres supérieurs à 3 µm. Ce volume correspond au réseau poreux qui apparaît interconnecté sur un volume reconstruit au microtomographe avec la résolution maximale. On observe que cette proportion macro/microporosité est différente entre les deux matériaux. Elle est de 40 contre 60% ±5% et de 25% contre 75% ±5% pour les blocs LGG et LGF, respectivement. Ce résultat est cohérent avec nos observations microstructurales, le réseau de macropores étant plus restreint au sein du matériau LGF. Les caractéristiques structurales aux échelles fines sont donc en adéquation avec les mesures de porosité. On cherche maintenant à préciser les propriétés d'écoulement de nos roches.

III.1-C)Caractérisation des propriétés d'écoulement

Les données de porosimétrie mercure présentées précédemment donnent également une estimation de la perméabilité des échantillons testés. La forme de la courbe de pression capillaire permet, sur la base de modèles empiriques (Thomeer, 1960) ou de la théorie de la percolation (Kamath, 1992), une détermination des perméabilités. Nous avons utilisé ces modèles qui sont bien adaptés pour des valeurs de perméabilité supérieures à 1 mD, ce qui est en général le cas pour un carbonate. Les résultats sont présentés dans le Tableau 3 et sont

issus de trois mesures pour le LGG et une mesure pour le LGF. On observe que la perméabilité du LGG est plus élevée en moyenne que la perméabilité du LGF ce qui est en accord avec les observations microstructurales, qui montrent un réseau poreux plus fin pour le LGF.

Tableau 3 : Valeur de perméabilité estimée à partir des résultats de porosimétrie mercure.

	Thomeer (mD)	*Kamath (mD)*
LGG	**129**	**97**
LGF	**23**	**20**

Ces estimations restent basées sur des mesures réalisées sur des échantillons de petite taille (cylindre de 15 mm de diamètre et 15 mm de hauteur). On a donc cherché à les confronter à des mesures de perméabilité faites sur les échantillons cylindriques de 40 mm de diamètre et 100 de haut mm (environ), avant altération, en suivant le protocole présenté dans le chapitre II.1-D-b) . Les mesures ont été faites sur six échantillons pour le LGG et quatre échantillons pour le LGF. Ces données de perméabilité sont complétées par la valeur de porosité moyenne de chaque échantillon et sont résumées dans le Tableau 4. La valeur moyenne de perméabilité est proche de celle estimée par la porosimétrie mercure. Le détail de la perméabilité et de la porosité de chaque échantillon est donné en annexe 2. Nous précisons que pour des raisons de soucis expérimentaux lors du montage définitif de notre dispositif (fuites dans le réseau d'azote contrôlant la pression de pore et une partie du circuit relié au capteur de pression différentielle), la mesure de la perméabilité sur les échantillons préparés pour les essais mécaniques du bloc LGF n'a pas pu être réalisée de façon systématique.

Le résultat à retenir est le facteur cinq sur la valeur de perméabilité entre les deux types de blocs pour des porosités voisines. Cette différence peut s'expliquer microstructuralement par la présence plus importante des ciments syntaxiaux dans le bloc LGF. Ces derniers, bien que mésoporeux forment néanmoins une barrière à l'écoulement entre la microporosité et la macroporosité. On a ici un exemple qui montre la limite des modèles prédictifs de la perméabilité basés sur la porosité moyenne et les diamètres d'entrée de pores (Guéguen et Dienes, 1989). Les analyses microstructurales à l'échelle du réseau poreux s'avèrent alors nécessaires pour compléter les données pétrophysiques moyennes.

Tableau 4 : Moyenne, écart type, valeur minimum et maximum de la perméabilité des blocs LGG et LGF obtenus par mesure de perméabilité à l'eau

	Moyenne (mD)	*Ecart type*	*Nombre d'échantillons*	*Porosité moyenne (%)*
LGG	**105,5**	**17,9**	**6**	**23,4**
LGF	**17,2**	**0,7**	**4**	**24,0**

III.2-Évolution des paramètres pétrophysiques et de la microstructure

Nous allons dans cette partie nous attacher à discuter l'évolution, après altération, des propriétés précédemment décrites pour les deux matériaux sains. Afin de faciliter la compréhension des figures, nous rappelons que deux protocoles sont suivis en fonction des propriétés et caractéristiques mesurées :

- Les évolutions de porosité et de microstructure sont décrites sur des échantillons fils prélevés à différents niveaux d'altération
- Les évolutions de perméabilité sont mesurées sur une même carotte entre chaque cycle d'altération et sans la sortir du montage.

III.2-A)Evolution de la porosité

III.2-A-a) Homogénéité de l'altération sur les macros échantillons

Avant d'évaluer les évolutions de notre milieu poreux, il fallait dans un premier temps s'assurer que les altérations réalisées sont bien homogènes, et ce, pour les deux types de matériaux. Nous avons donc scanné les échantillons de façon systématique après chaque sortie du dispositif expérimental et avant la découpe nécessaire à la réalisation de sous échantillons. A titre d'exemple, la Figure 57 présente un résultat après altération pour un échantillon du bloc LGG et un échantillon du bloc LGF. On y voit qu'après deux cycles d'altération pour LGG_9 et six cycles d'altération pour LGF_12, les hétérogénéités locales (relatives) des échantillons sont conservées : les courbes « altérées » sont essentiellement des translations vers des valeurs plus élevées de porosité. Ceci se vérifie par la différence quasi constante entre les valeurs initiales et finales tout le long du profil de porosité. Dans cet exemple il y a entre deux cycles successifs d'altération une augmentation de porosité moyenne de 0,9 unité de porosité. Pour l'échantillon altéré six fois, on observe une

augmentation de porosité de 2,6 unité de porosité. A partir de ces données on peut estimer qu'un cycle d'altération augmente la porosité d'environ 0,4 unité de porosité. Cette valeur est comparable à la valeur obtenue pour le calcaire de l'Euville par Nguyen (2012) dans sa thèse, ainsi qu'aux résultats obtenus par Egermann *et al*., (2006) sur deux autres calcaires, l'un pelloïdal et l'autre bioclastique. Ce taux d'altération est très stable, ce qui nous permet d'altérer aisément nos échantillons jusqu'à la valeur de porosité envisagée.

Seule la surface d'injection des échantillons avant découpe présente une évolution de l'hétérogénéité locale (augmentation relative). Ceci peut s'expliquer par deux facteurs :

- Dans un premier temps, une accumulation plus importante d'acide est possible dans les rainures du piston au contact de l'échantillon. Malgré le nettoyage à la saumure de cette surface, cet acide résiduel ne s'équilibre pas avec l'échantillon et favorise l'altération au voisinage du piston.

- Dans un second temps, il est possible que l'estimation de la porosité à partir des densités radiologiques moyennes sur une coupe soit affectée en bordure d'échantillon (surface irrégulière ou défaut de parallélisme).

Cette observation est à la base de la précaution prise lors de la préparation des échantillons macroscopiques pour les essais triaxiaux. Les échantillons avant altération auront une longueur d'environ 100 mm, puis seront découpés à la taille standard pour les essais mécaniques (80 mm) après altération. L'essai triaxial sera alors représentatif de la prise de porosité liée à l'altération et son interprétation ne sera pas entachée par l'éventuelle prise en compte d'effets de bord.

Nous notons que dans la Figure 57.a nous présentons les résultats pour l'échantillon LGG_9 dont la porosité initiale ne correspond pas à nos critères de sélection (porosité moyenne de 24%). Nous précisons que cet échantillon n'avait pas vocation à être utilisé pour des essais mécaniques, mais uniquement pour des essais d'altération et d'analyses microstructurales. Cependant nous présentons ses profils de porosité car ils illustrent de façon claire les effets de bords.

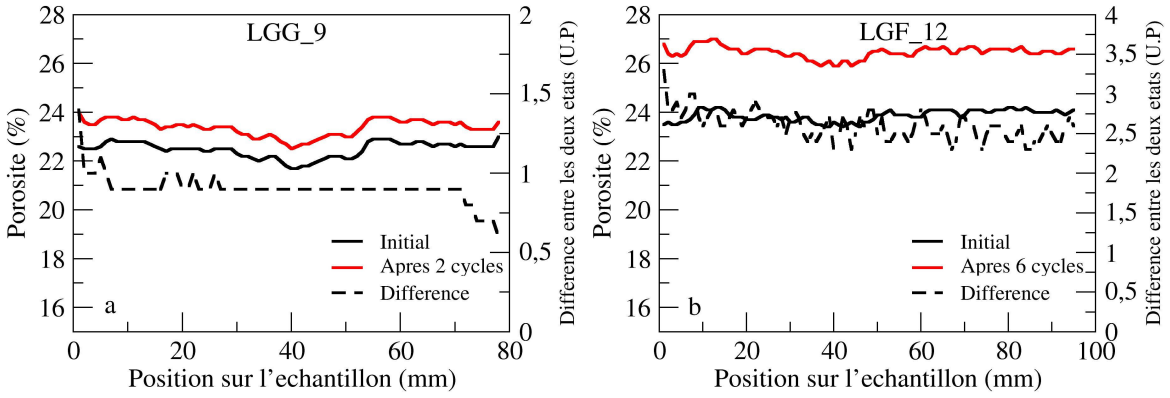


Figure 57 : a) exemple d'évolution de profils de porosité après deux cycles d'altération pour un échantillon de LGG et b) un échantillon du LGF après six cycles

III.2-A-b) Etude de la porosité des échantillons fils après découpe

Cette analyse a été réalisée dans un premier temps sur le bloc LGG. Nous avons pris deux échantillons, LGG_1 et LGG_2. Afin d'optimiser les temps de manipulation, un échantillon était placé en cellule d'altération pendant que l'échantillon compagnon faisait l'objet des étapes relatives aux mesures scanner et au tronçonnage (celles-ci incluant également les temps de séchage). De plus, la longueur maximale autorisée pour nos échantillons dans le dispositif est de 110 mm, et chaque sous échantillonnage nécessite le prélèvement d'un disque de 15 mm d'épaisseur. Nous avons également prélevé sur chacun des échantillons un disque de référence avant sa mise en place en cellule d'altération. Si ce tronçonnage est réalisé après chaque cycle d'altération, au bout de six cycles l'échantillon ne mesurerait plus que 10 mm, or la taille minimale de notre échantillon pour assurer le contact avec les pistons doit être de 60 mm de long. Nous ne pouvions donc raisonnablement réaliser que trois tronçonnages par échantillon.

L'échantillon LGG_2 devait représenter ainsi les cycles 1, 3 et 5 et l'échantillon LGG_1 les cycles 2, 4 et 6, en partant de l'hypothèse que notre sélection initiale des matériaux rendait cette comparaison possible et que le volume du sous échantillon est très supérieur au VER (volume élémentaire représentatif). Suite à quelques soucis d'expérimentation, nous avons finalement obtenu des résultats pour LGG_2 à l'état sain, 1 et 4 cycles et pour LGG_1 à l'état sain, 2 et 5 cycles, pour des mesures de porosités au mercure, à l'eau et à l'Hélium. Le bloc LGF n'a été analysé qu'en trois points aux cycles 0, 2, 4 et 6 via l'échantillon LGF_19. Les profils de porosité obtenus par scanner pour ces trois échantillons sont présentés dans la Figure 58. Les profils de porosité conservent bien les hétérogénéités locales, hormis à la face

d'entrée des échantillons. On a aussi obtenu les profils de porosité scanner à 0, 2, 3 et 5 cycles pour LGG_1 et 0, 1, 3 et 4 cycles pour LGG_2. L'expérience menée sur le LGF_19 a été plus systématique et présente les profils scanner obtenus à 0, 2, 4 et 6 cycles d'altération.

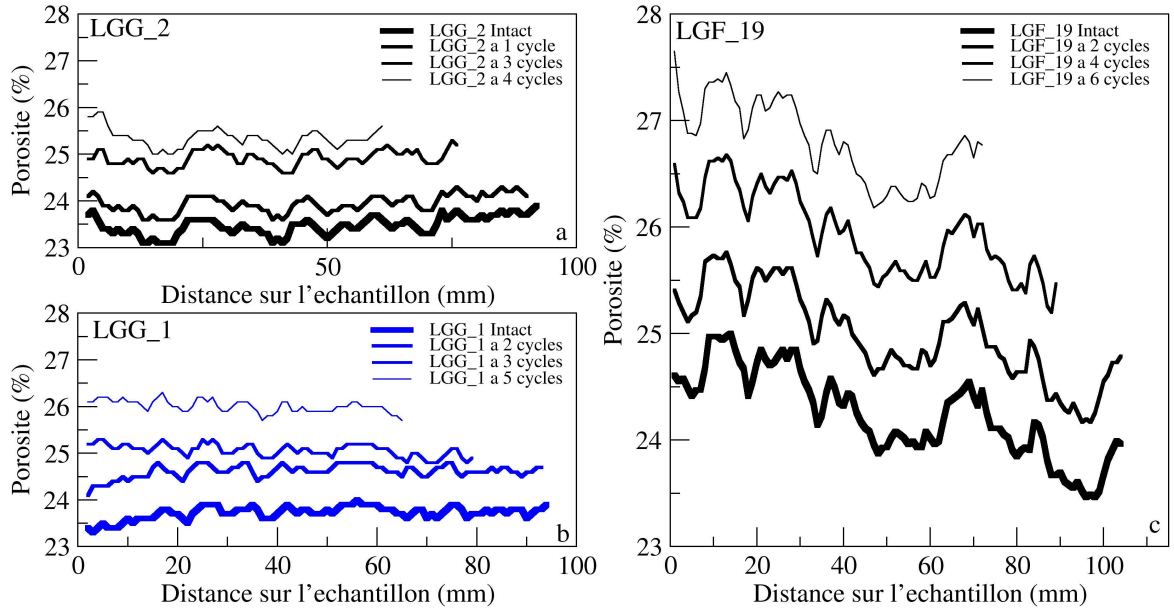


Figure 58 :a) évolution de porosité scanner pour LGG_2 b) évolution de porosité scanner pour LGG_1 et c) évolution de porosité scanner pour LGF_19

Nous avons aussi observé l'évolution de la porosité avec l'altération à l'aide de la porosité au scanner et de la porosité à la saumure, obtenues sur les restes de l'échantillon père, après chaque tronçonnage et au moment de le remettre en cellule. On obtient aussi une augmentation de porosité de 0,4 unité de porosité par cycle, ce qui est visible dans la Figure 59. Nous retrouvons le décalage de 0,5 unité de porosité entre les mesures de porosité scanner et à la saumure, qui avait déjà été mis en évidence sur les matériaux sains et qui est ici conservé au fur et à mesure des cycles. Ceci indique que la dissolution n'est pas suffisante pour rendre accessible la porosité qui ne l'est pas initialement. Nous allons particulièrement développer les résultats obtenus pour LGF_19, car son profil de porosité présente un gradient entre la face d'entrée et la face de sortie de l'échantillon. Cette hétérogénéité macroscopique entraîne lors de la découpe de la face de sortie une perte de matière plus dense. De ce fait l'échantillon père résiduel est alors en moyenne plus poreux sans même tenir compte de l'altération chimique. La Figure 59.b présente les résultats pour lesquels la porosité scanner est évaluée sur toute la longueur de l'échantillon pour être comparable à la valeur par saturation à la saumure. On obtient pour ces deux courbes une pente de 0,46 pour la courbe issue des mesures par saturation et 0,43 par mesure scanner. Nous avons recalculé la pente

obtenue par porosité scanner en ne considérant que la longueur du plus petit échantillon père (celui obtenu après six cycles d'altération, soit 75 mm), on trouve une pente de 0,39. La valeur moyenne est proche de 0,4 avec une certaine variabilité selon l'homogénéité initiale de l'échantillon et résultant du protocole suivi. La pente de LGG_1 ne montre pas cette variabilité, car le profil de porosité initiale est plus homogène.

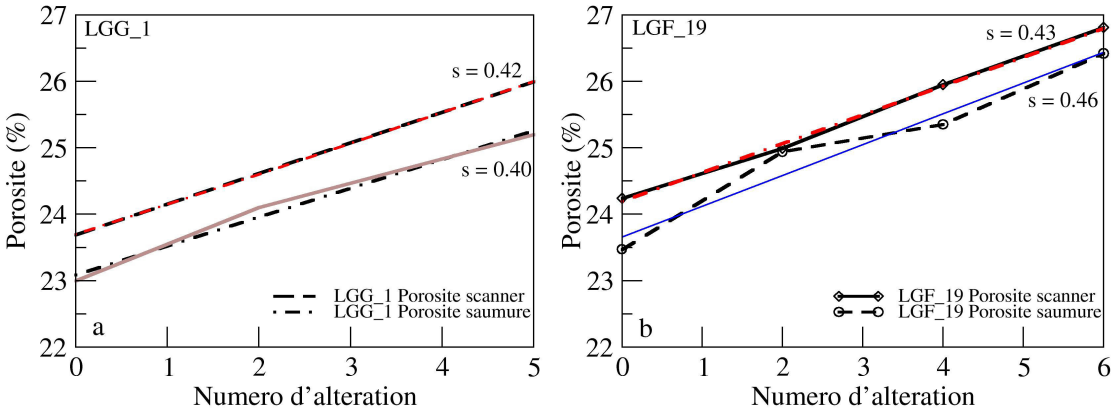


Figure 59 : courbe comparative de l'évolution de porosité estimée par une mesure à l'eau et au scanner sur l'échantillon père a) pour LGG_1 et b) pour LGF_19

On a par la suite comparé ces valeurs de porosité moyenne aux valeurs obtenues par mesures de porosité à l'Hélium, par RMN et au mercure sur les échantillons fils cylindriques de 15 mm x 15 mm. Ces résultats sont compilés dans les Figure 60.a et b pour le LGG_1 et LGG_2 ainsi que le LGF_19.

La pente obtenue pour les échantillons LGG_1 et LGG_2 par mesure de porosité Hélium est de 0,20. La valeur de porosité moyenne est très élevée pour cette méthode. Ceci peut être dû au fait qu'il est difficile de ne déposer à la surface des pores qu'une couche mono atomique d'Hélium. On aurait donc une surévaluation de la porosité, phénomène également observé sur le calcaire d'Estaillades dans la thèse de Dautriat (2009). La pente obtenue en RMN sur ces mêmes échantillons est de 0,34. Enfin, la pente obtenue par porosimétrie mercure est de 0,22. Pour l'échantillon LGF_19 la pente obtenue par porosité Hélium est de 0,33, elle est de 0,75 pour la RMN et enfin de 0,18 pour la porosimétrie mercure. Ces trois méthodes donnent des résultats cohérents dans la définition de la linéarité de l'évolution de la porosité avec l'altération (à l'exception de la méthode RMN pour LGF_19, dont la pente n'est évaluée qu'à partir de deux points suite à un souci expérimental). Toutefois, l'augmentation de porosité d'environ 0,2 unités de porosité par cycle est très en dessous de ce que nous avons obtenu sur les échantillons pères (dont les résultats ont été présentés précédemment) et des valeurs

d'environ 0,4 unité de porosité données dans la littérature. Cet écart entre les méthodes peut s'expliquer par le fait que les échantillons fils ne peuvent plus être considérés comme des VER. Néanmoins, la dissolution est observable et ses effets restent linéaires.

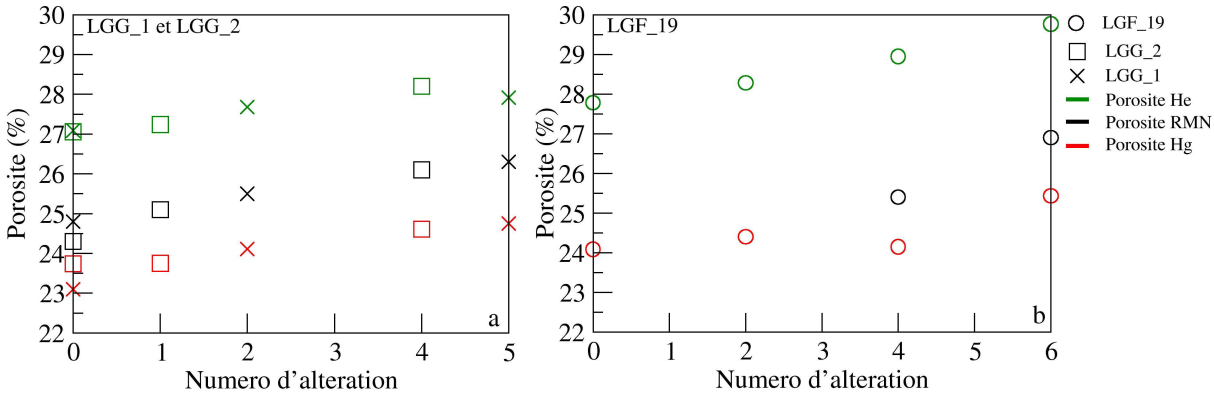


Figure 60 : Comparaison des évolutions de porosité entre a) le LGG_1 et LGG_2 et b) le LGF_19 obtenues par porosimétrie mercure, RMN et Hélium

L'ensemble des données nous a permis de confirmer que l'augmentation de porosité est relativement homogènes à l'aide de notre protocole d'altération. Les mesures faites sur les macros échantillons de 40 mm x 100 mm montrent que leur volume est suffisamment supérieur au VER et que les hétérogénéités locales ne perturbent pas l'homogénéité globale des échantillons sélectionnés. Cependant, malgré la sélection en amont de nos échantillons les hétérogénéités locales demeurent et le sous échantillonnage (diminution du volume de l'échantillon) amplifie leur influence sur les propriétés mesurées. Les hétérogénéités à cette échelle sont donc un élément à prendre en considération lors des études menées au microtomographe sur des échantillons cylindriques de 10 mm x 20 mm pour les essais mécaniques *in-situ*.

III.2-A-c) Evolution des courbes des propriétés RMN et IMHP

Nous allons maintenant décrire l'aspect des courbes obtenues par RMN et porosimétrie mercure après altération. Nous commençons par décrire les courbes RMN nous permettant d'observer l'évolution de la taille moyenne des pores. La Figure 61.a présente les courbes pour LGG_1 et LGG_2 après 2 et 5 cycles, 1 et 4 cycles respectivement. On remarque en premier lieu que pour ces échantillons de LGG le pic de la macroporosité est plus marqué que pour l'échantillon à l'état sain mais la proportion entre la macroporosité et la microporosité reste similaire. On ne remarque aucune évolution marquée entre les différents états d'altération. L'observation est similaire pour l'échantillon LGF_19 dans la Figure 61.b,

l'altération ne semble pas modifier la répartition de la porosité ni faire évoluer suffisamment le rapport V/S. Ces résultats sont difficiles à discuter et interpréter car la variabilité du signal RMN dû aux hétérogénéités microstructurales (différents échantillons fils) peut être suffisamment importante pour masquer les éventuels effets dus à la dissolution. Pour s'en assurer il aurait fallu mener les mesures sur le même et unique échantillon à chaque niveau d'altération, comme cela a été fait par Egermann *et al.*,(2006), qui a pu démontrer une diminution du T2 traduisant une diminution du rapport V/S en lien avec l'augmentation de la surface spécifique.

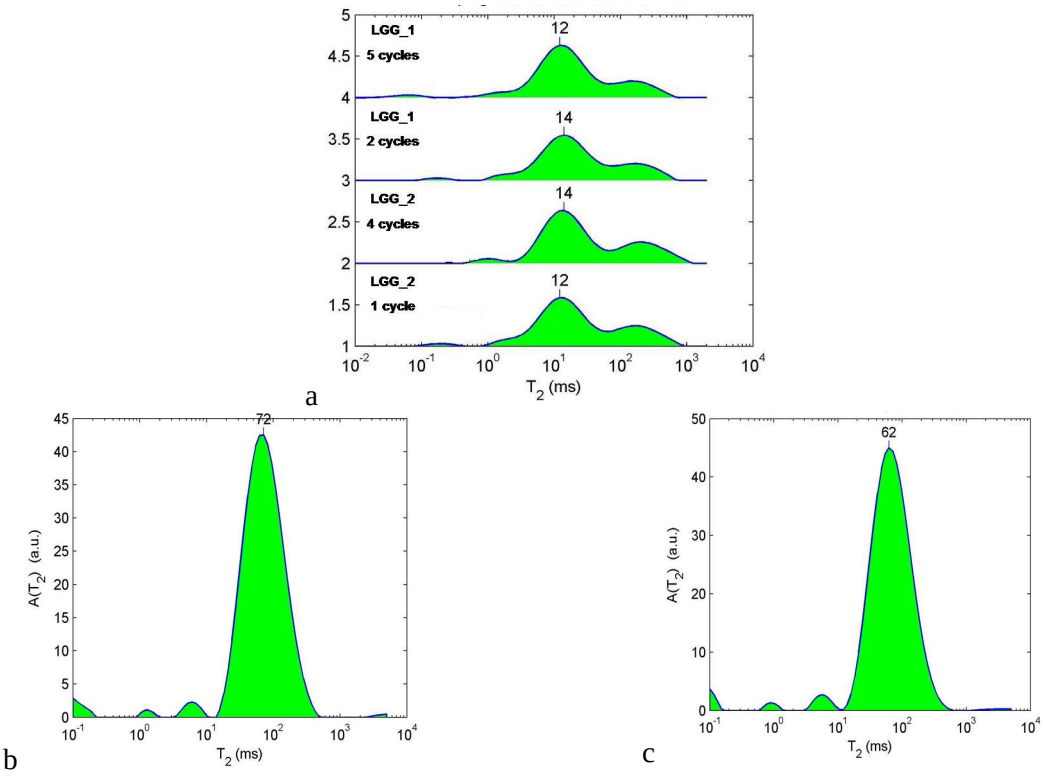


Figure 61 : a) Signal RMN pour le LGG après 1 cycle et 4 cycles pour LGG_2 et 2 cycle et 5 cycles pour LGG_1 b) Signal RMN pour le LGF_19 sain c) LGF_19 altéré six fois

Nous analysons ensuite les courbes de pression capillaire (Figure 62.a, b) et les courbes de leurs dérivées pour le LGG et le LGF (Figure 62.c, d), issues de la porosimétrie mercure. Les courbes de pression capillaire des deux types de Lavoux ne montrent pas d'évolution nette dans les proportions de chaque sorte de seuil d'entrée de pore. On retrouve cependant les caractéristiques qui différenciaient à l'état initial les deux matériaux observés (taille des macros seuils d'entrée de pore). Les courbes dérivées ne permettent pas de mieux distinguer une tendance dans le développement des seuils de pore avec l'altération. Ici encore les hétérogénéités microstructurales initiales des échantillons fils, trop fines pour êtres détectées au scanner lors de la sélection des échantillons, peuvent être à l'origine d'une variabilité dans

la distribution des seuils de pore suffisamment importante pour masquer les effets d'altération.

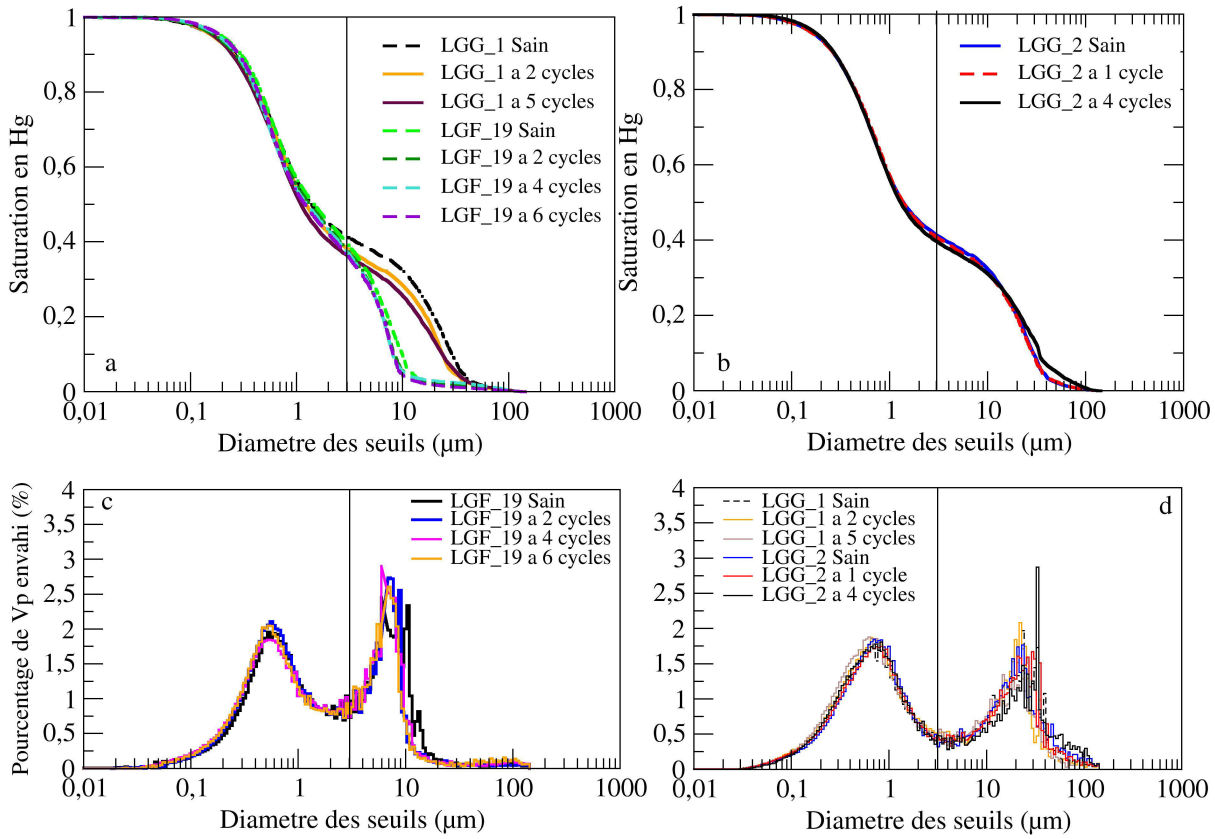


Figure 62 : a) évolutions des courbes de pression capillaires pour le LGG_1 et le LGF séparées de b) par soucis de clarté, b) évolution des courbes capillaires avec l'altération pour LGG_2 c)évolution des courbes des dérivés des pressions capillaires pour LGF_19 et d) LGG_1 et LGG_2

III.2-B)Evolution de la microstructure

Il est maintenant nécessaire d'analyser la microstructure au cours des différents cycles d'altération pour comprendre quels types de mécanismes de dissolution expliquent cette augmentation de la porosité et de vérifier l'homogénéité de ceux-ci à l'échelle du pore. Nous avons suivi le même protocole qu'à l'état sain pour l'analyse microstructurale. De manière systématique des lames minces et éprouvettes MEB ont été réalisées à partir des sous échantillons JGG. Ces analyses reposent sur un état d'altération donné pour lesquels on ne dispose pas de la même zone d'observation à l'état sain, ce qui peut rendre difficile l'interprétation des figures de dissolutions pour de faibles augmentations de la porosité. Pour compléter ces deux analyses, nous avons donc altéré un échantillon jusqu'à 13 cycles pour le visualiser à un stade très avancé d'altération et mettre clairement en évidence les mécanismes de dissolution locaux. L'étude en 3D sera décrite séparément, car elle a nécessité un travail de

développement méthodologique plus important. Celle-ci repose sur une analyse comparative d'un échantillon de petite taille à l'état sain et altéré. Le protocole d'acquisition et les méthodes de post-traitement des volumes images seront détaillés dans la section III.3-.

L'analyse en lames minces des échantillons du bloc LGG a été réalisée sur des matériaux ayant subi 2, 4, 5 et 13 cycles d'altération. Plus tard durant la thèse, une analyse similaire a été conduite sur un échantillon issu du bloc LGF altéré 6 fois, et ce, afin de vérifier que les mécanismes de dissolution sont communs aux 2 types de matériaux. L'analyse des lames minces à la lumière blanche sur les échantillons de LGG n'a donné accès qu'à de rares indices de l'altération qu'il a fallu confirmer à l'aide de la cathodoluminescence. Comme on le voit sur la Figure 63.a certains ciments syntaxiaux du LGG montrent des « créneaux » à leur bordure. Ces créneaux n'ont pas été identifiés sur la roche saine et sont donc supposés imputables à l'altération. L'utilisation de la cathodoluminescence a permis de confirmer cette hypothèse, puisque les créneaux coupent des bandes de croissances (Figure 63.b), ce qui prouve qu'ils sont postérieurs à ces dernières.

Ces études n'ont pas été concluantes sur les lames minces de LGF, car la microstructure est trop fine pour être imagée aisément en cathodoluminescence. Nous n'avons d'ailleurs pas réussi à trouver des figures en créneaux sur le ciment mésoporeux du LGF altéré six fois.

Par ailleurs, en utilisant l'histoire diagénétique présentée dans la partie dédiée à la description de l'état sain du LGG, nous avons pu comparer le nombre de bandes de croissance des ciments syntaxiaux présents dans la macroporosité à l'état sain et leur nombre à l'état altéré. Aucune nouvelle bande n'est visible en cathodoluminescence sur la surface des ciments, tout du moins à la résolution spatiale et au grossissement optique disponible, ce qui prouve qu'il n'y a pas eu de précipitation de calcite au cours de nos altérations. Nous ne présentons ici qu'un exemple d'altération sur un ciment syntaxial dans un échantillon issu du LGG altéré 13 fois (Figure 63).

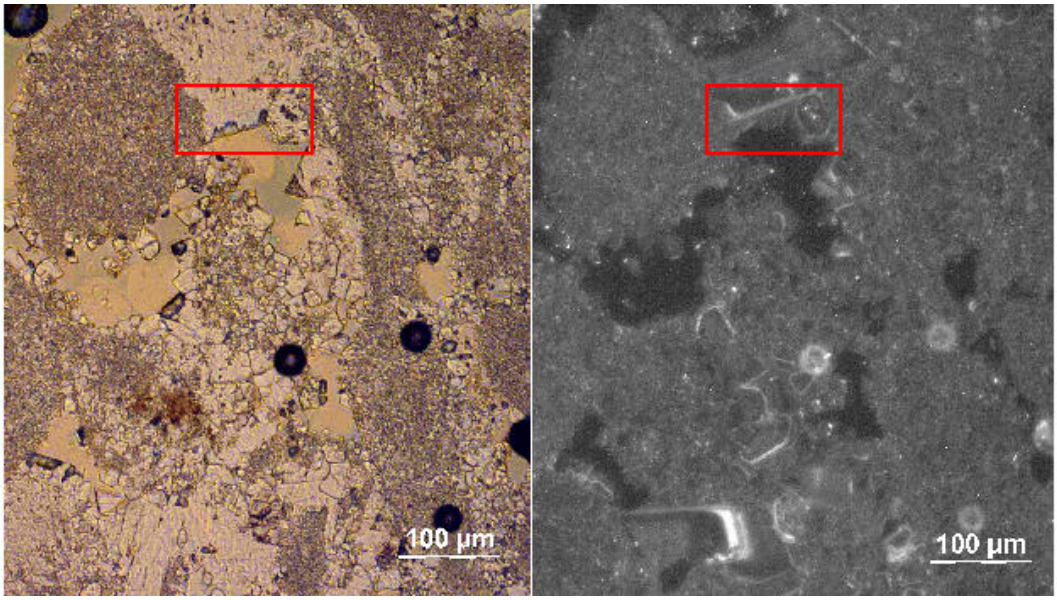


Figure 63 : Echantillon de Lavoux altéré en lumière blanche et cathodoluminescence. Dans le carré rouge est indiqué un motif en créneaux.

Afin d'affiner ces observations, nous avons analysé au MEB la microstructure après altération. D'après les premiers résultats sur lame mince, nous avons investigué préférentiellement les zone de macro porosité alors bien résolue. Dans les échantillons LGG, nous avons pu observer dès le deuxième cycle d'altération l'apparition sur la surface des rhomboèdres de calcite des petites marques creusées à leur surface pourtant très lisse à l'était initial que l'on appelle "corrosion pits" (Figure 64.c). A quatre cycles nous avons pu observer un aspect "peau d'orange" (Figure 64.a) sur la surface de certains rhomboèdres, certainement résultant de l'altération plus importante. Ces deux types d'indice d'altération avaient déjà été observés par Sterpenich *et al.,* (2009) dans son expérience à atmosphère contrôlée en CO_2. On observe aussi dans les zones à imbrication de rhomboèdres des formes suggérant un arrachement d'anciens rhomboèdres de plus petite taille (Figure 64.b). L'échantillon à 13 cycles présente quant à lui des altérations de ciment très avancées, donnant des formes pyramidales suggérant une dissolution de la calcite selon ses plans cristallins (Figure 64.d). Les échantillons LGF présentent les mêmes «corrosions pits », mais la plus faible quantité de calcite de blocage rend plus difficile leur recherche.

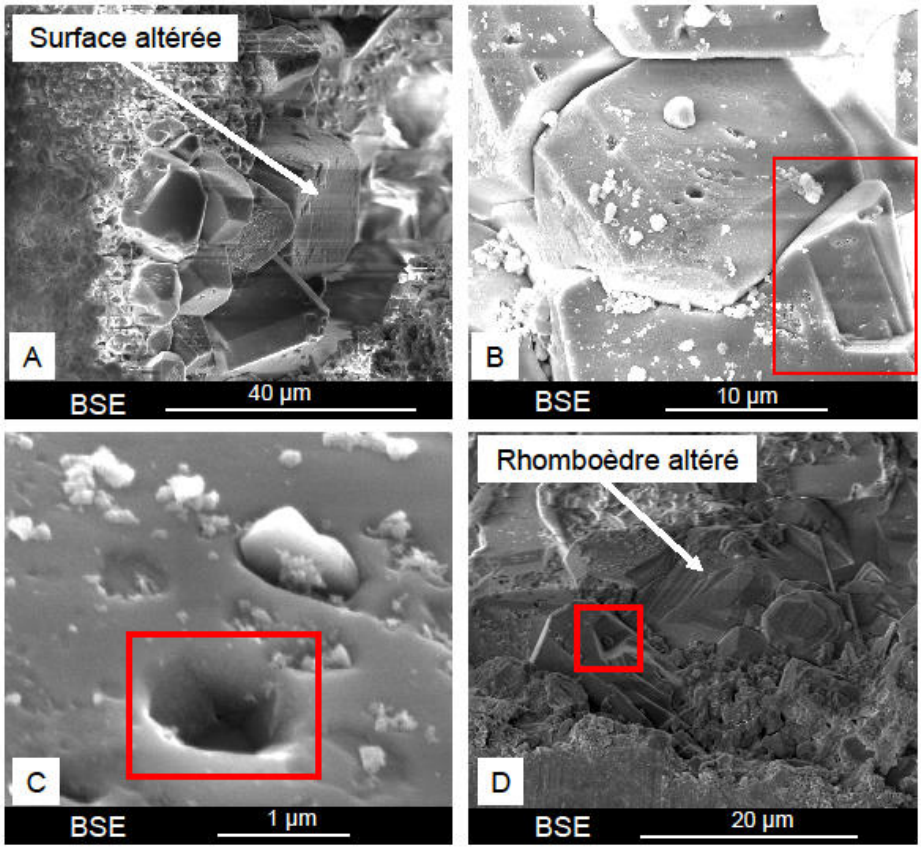


Figure 64 : a) Surface d'altération en « peau d'orange » b) indice de décrochement d'un rhomboèdre de calcite c) exemple de « corrosion pit » et d) altération très avancée d'un cristal de calcite à 13 cycles d'altération

L'ensemble de ces indices microstructuraux demeure cependant insuffisant pour expliquer une prise de porosité de 0,4 unité de porosité par cycle. En effet, les marqueurs de la dissolution cités précédemment sont trop peu nombreux et ne représentent au final qu'un volume de matière dissoute trop faible pour être à l'origine de cette augmentation de la porosité. Deux parties de la microstructure peuvent être à l'origine de cette augmentation de la porosité. La première est le volume des pores, dont la surface peut être dissoute et la seconde est la micrite composant l'ensemble des oolithes et des pellets de nos roches. Le seul moyen d'investiguer ces deux possibilités est de réaliser une image avant et après du volume de la roche, ce qui n'est pas possible pour les lames minces et le MEB (qui nécessitent une préparation des surfaces d'observation). La solution est l'utilisation du microtomographe qui permet d'imager un volume de roche. L'utilisation du micro tomographe pour cette problématique est couplée à une autre utilisation que nous décrivons dans la section suivante.

III.2-C)Evolution de la perméabilité

L'évolution de la perméabilité de nos blocs a été suivie selon le protocole précédemment décrit, pendant lequel les échantillons ne sont pas sortis du dispositif expérimental. Dans cette partie nous allons présenter les résultats obtenus par une méthode de mesure de perméabilité bidirectionnelle.

III.2-C-a) Mesure unidirectionnelle de la perméabilité

La Figure 65 montre les résultats de trois échantillons pour chaque bloc. Les échantillons pour le bloc LGG sont LGG_7, LGG_9 et LGG_10, ils ont été altérés 13 fois, 4 fois et 6 fois respectivement. Les échantillons pour le LGF sont LGF_10, LGF_12 et LGF_21 et ont été altérés 3 fois, 6 fois et 3 fois respectivement. L'incertitude sur les mesures de perméabilité de notre dispositif est de 5%. On observe que la perméabilité pour les deux blocs n'évolue pas linéairement. De plus, cette évolution ne montre pas une augmentation systématique de la perméabilité, malgré l'augmentation de porosité. Cette observation avait déjà était faite par Egermann *et al.*, (2006). Pour l'expliquer, les auteurs avaient supposé la présence de particules fines dans le réseau poreux, mais sans en apporter de preuve directe. Ce type de phénomène est en fait bien connu des ingénieurs de puits sous le nom de "clogging" et des études menant à mieux comprendre le déplacement des particules au sein d'un matériau poreux dans le domaine pétrolier ont été menées (Donaldson *et al*., 1977 ; Valdes *et al*., 2006 ; Zwart *et al*., 2008) ce phénomène ne se limitant pas aux effets de dissolutions. Cependant, dans la majorité des cas, les études portent sur des dissolutions hétérogènes, générant des arrachements en grande quantité, comme on peut observer lors de l'injection d'acide ou de CO_2 réactif dans un puits (Sayegh *et al.*, 1990 ; Bartko *et al*., 1995). Nous avons donc cherché à prouver l'existence de ces particules fines au sein du réseau poreux par le biais de deux méthodes. La première repose sur l'analyse du contenu des effluents après altération, à l'aide d'une méthode de diffraction laser permettant d'accéder à la taille de particules en présence dans ces effluents. La seconde repose sur l'utilisation du micro tomographe et de l'altération de mini échantillons dimensionnés pour cet appareil.

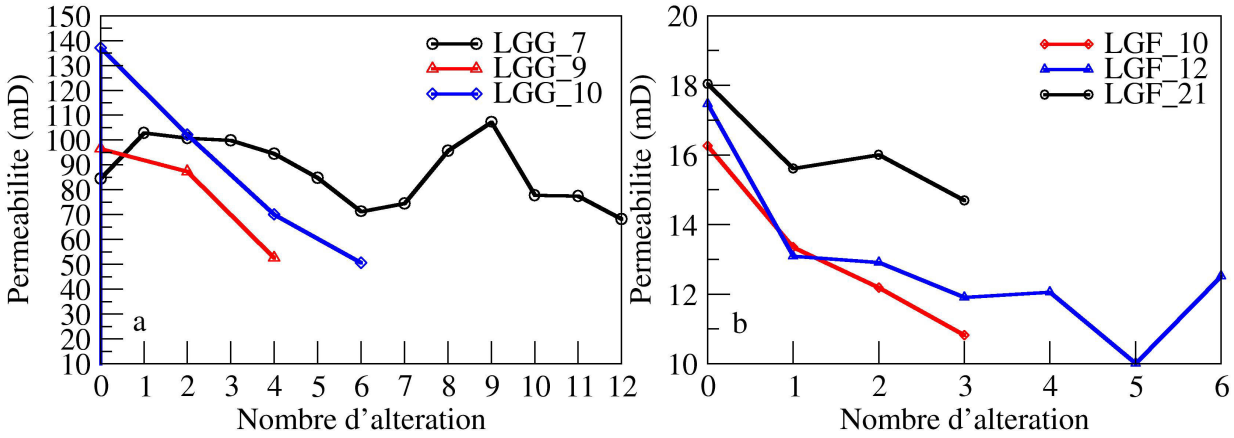


Figure 65 : Mesure de perméabilité obtenues par un capteur de pression différentielle pour a) trois échantillons de LGG b) et trois échantillons de LGF

III.2-C-b) Mesure bidirectionnelle de la perméabilité

Pour vérifier l'hypothèse de la présence de particules fines dans le réseau poreux, nous avons réalisé des mesures de perméabilité en faisant écouler la saumure alternativement par les deux côtés d'un échantillon et ceci afin de tenter de remobiliser les particules dans le réseau poreux entre chaque mesure. La procédure était la suivante : 1) une mesure de perméabilité dans le sens A, 2) un écoulement à débit de 10 ml/min, puis une mesure de la perméabilité dans le sens B, 3) à nouveau dans le sens A et enfin, 4) une dernière fois dans le sens B. L'échantillon est altéré et on recommence les mesures de perméabilité. Les résultats de l'expérience menée sur l'échantillon LGG_18 sont résumés dans la Figure 66. L'évolution globale de la perméabilité avec l'altération est très similaire à celle obtenue par les mesures unidirectionnelles : la perméabilité ne montre pas une évolution monotone avec l'altération. On note que pour cet échantillon la tendance globale est à l'augmentation. L'étude des perméabilités bidirectionnelles à chaque cycle ne fait pas ressortir de tendance générale, les variations de perméabilité entre les deux directions restent dans l'erreur de 5% de la méthode. Ces résultats ne signifient pas pour autant qu'il n'y a pas de particules fines dans le réseau, ils montrent simplement que l'écoulement de fluide dans les deux directions ne suffit pas à remobiliser les particules de façon suffisante pour modifier la perméabilité, ou que la perméabilité est avant tout déterminée par la quantité globale de particules piégées et non pas par leur position dans le réseau poreux.

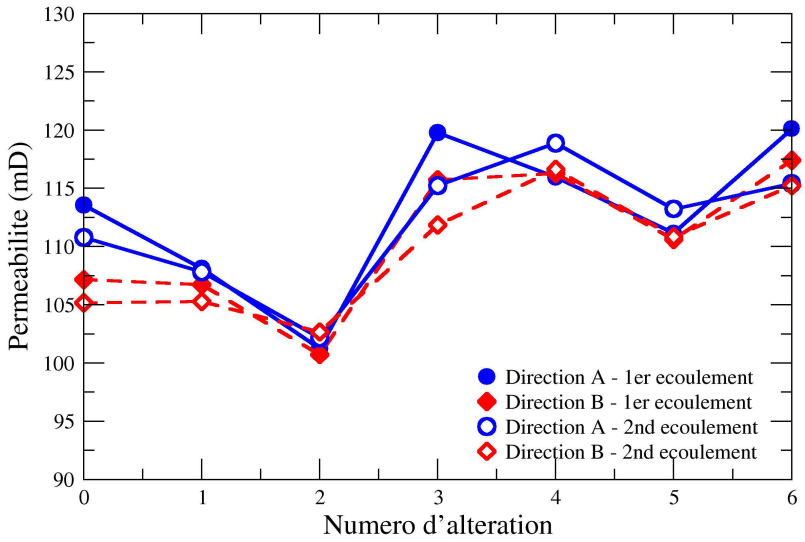


Figure 66 : mesure de perméabilité bi directionnelle pour l'échantillon LGG_18

III.3-Mise en évidence de l'existence de particules décrochées après altération

III.3-A)Mesures indirectes de l'existence des particules fines

Après chaque altération, trois volumes poreux des effluents issus du nettoyage à la saumure des échantillons sont récupérés. Nous prenons soin de collecter 3 fractions correspondant aux 3 volumes de pore successives. Le volume de chaque fraction est estimé par l'intermédiaire de notre pompe d'injection. Ces fluides sont ensuite dilués et analysés par un diffractomètre laser de la marque Horiba (10 nm de limite de mesure). Cet appareil nous permet d'avoir une répartition moyenne des tailles de particules contenues dans le fluide. Afin de s'assurer que le signal enregistré ne provient pas d'éventuelles microparticules provenant de l'acide retard (dont on ignore la structure moléculaire et celle des additifs), une mesure à blanc est réalisée préalablement. Ce blanc se fait à l'aide d'un mélange de saumure filtrée à 5 g/l de NaCl et d'acide retard dans les proportions de dilution correspondant à la préparation de notre acide. Le résultat de ces mesures sert à régler le zéro de l'appareil.

Les résultats obtenus sur un volume poreux traversant l'échantillon intact montrent qu'aucune particule solide n'est contenue dans les effluents. Cette observation nous permet d'établir qu'un écoulement non réactif ne provoque pas d'arrachement de particules de calcite, ou bien en dessous du seuil de détection de l'Horiba. Nous avons réalisé cinq mesures pour les échantillons de LGG_11 et trois mesures sur un état d'altération pour le LGF_19 (trois

volumes poreux du 6eme cycle). Le nom de l'échantillon et l'altération associée sont représentés dans le Tableau 5.

Tableau 5 : Résumé des analyses par diffraction laser.

Nom	*Cycle*
LGG_9	**3 et 5**
LGG_10	**1, 2 et 3**
LGG_11	**1, 2, 3, 4 et 5**
LGF_19	**6**

Les répartitions des tailles de particules selon leurs diamètres sont données Figure 67.a pour quatre cycles d'altération au premier volume poreux évacué (avec une moyenne de 3 mesures par volume). Pour les effluents issus de LGG_11, on retrouve deux pics, le premier trouve son maximum aux environ de 10 µm et le second à 100 µm. Les plus grosses particules pourraient provenir soit d'arrachements en face de sortie de l'échantillon lors du passage du fluide, ou bien de particules de rouille provenant de l'altération par l'acide du piston et des tubages qui ne peuvent êtres nettoyés. La famille de particules à 10 µm est, en revanche difficilement explicable autrement que par la provenance du milieu poreux.

Les pics à 100 µm ne se retrouvent pas pour l'échantillon de LGF_19 (Figure 67.b). Seul le pic correspondant aux plus petites particules est présent, cette famille se disperse autour de la valeur moyenne de 2 µm. On observe un décalage du pic avec les volumes poreux pouvant correspondre aux particules les plus difficiles à faire sortir du réseau poreux. Pour le moment nous n'avons pas d'explication pour la présence de ces grosses particules pour le LGG, nous notons cependant que les mesures menées sur le LGG_11 ont été réalisées sur un montage recyclé qui était assez corrodé, contrairement à la mesure sur des effluents issus de LGF_19, laquelle a été menée sur un montage neuf.

Pour valider l'hypothèse que les plus petites particules sont issues du milieu poreux, nous avons analysé à la sonde EDX un filtrat de ces effluents issus de LGF_19. Cette analyse menée à l'aide d'un MEB nous permet d'obtenir la composition chimique locale de la surface que l'on souhaite analyser. Cette composition chimique est obtenue par mesure de dispersion de l'énergie des rayons X émis par la matière au contact avec le faisceau d'électron du MEB. Le résultat confirme que nous sommes en présence de poussière de calcite, dont une image est montrée dans la Figure 68. On y discerne par ailleurs les trous du filtre à 0,22 µm utilisé pour le filtrage.

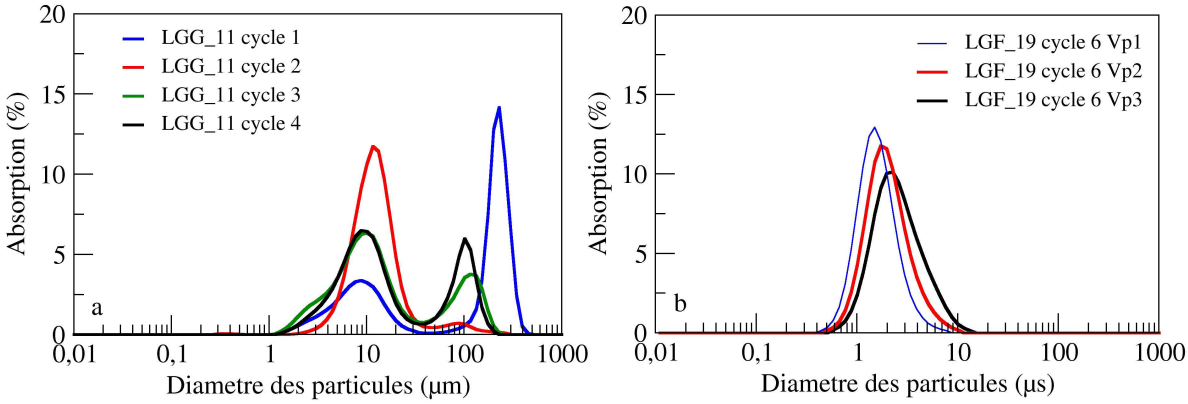


Figure 67 : a) Exemple sur l'échantillon LGG_11 de répartition des particules pour cinq cycles d'altération b) Exemple sur l'échantillon LGF_19 au cycle d'altération 6 sur les trois volumes poreux

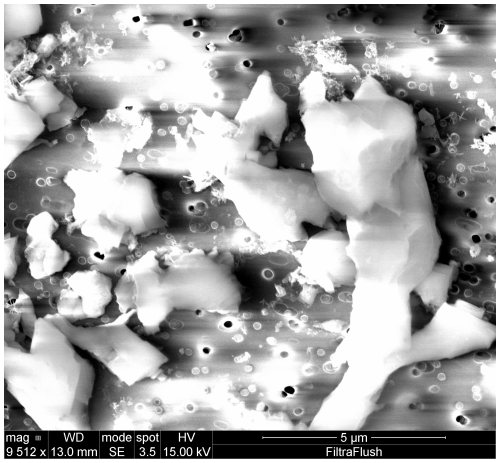


Figure 68 : Image des effluents de calcite à la surface du filtre.

Nous avons ensuite cherché à comparer ces dispersions moyennes de taille de particules aux seuils d'entrée de pore de nos échantillons. Le résultat est présenté dans la Figure 69. On observe nettement que la dispersion de nos particules est légèrement en retrait par rapport au seuil de pore maximum de nos échantillons. Cette observation indique bien que la taille maximale des particules susceptibles de sortir du réseau poreux est la limite maximum des seuils d'entrée de pores. On peut néanmoins supposer l'existence de particules de tailles supérieures qui peuvent elles aussi se décrocher et obstruer ces seuils. Cette hypothèse est d'autant plus réaliste que l'analyse de la microstructure au MEB a montré l'existence de traces d'arrachement de rhomboèdre de calcite dans la macroporosité dont la taille peut aller jusqu'à 30 µm dans le cas des échantillons de LGG par exemple. Afin de mettre en évidence ces particules nous avons tenté de les imager à l'aide d'un micro tomographe.

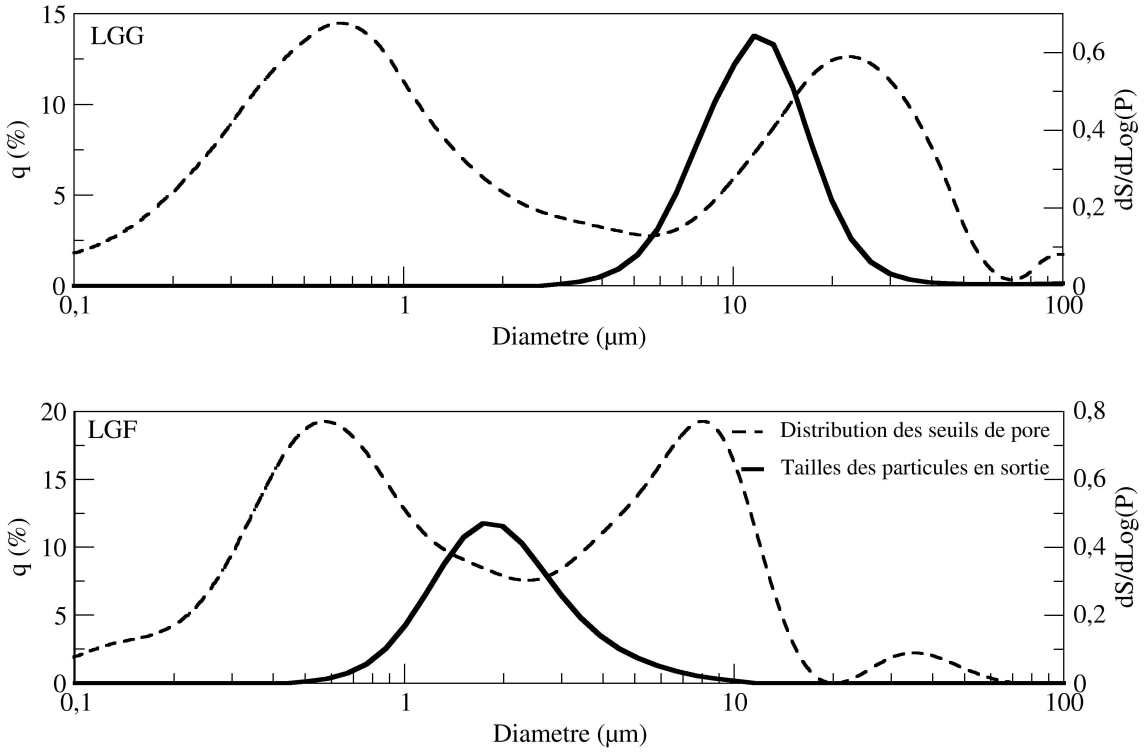


Figure 69 : Comparaison entre la taille de particules en sorties d'altération et les diamètres d'entrée de pore pour les blocs LGG et LGF

III.3-B)Visualisation des fines au sein du milieu poreux

III.3-B-a) Protocole d'altération miniaturisé

Au vu des résultats comparatifs présentés et de la limite en résolution de notre appareil à 3 µm, nous avons décidé de choisir le bloc de LGG pour cette étude, car les seuils d'entrées de pores sont plus larges (>3 µm), la macroporosité est plus présente et de façon générale la microstructure est plus simple (principalement des oolites). Pour atteindre la meilleure résolution possible, il faut des échantillons de très petit diamètre pour pouvoir approcher l'échantillon au plus près de la source d'émission des rayons X et minimiser leur absorption par la roche. Il nous a donc fallu trouver une solution pour altérer des échantillons de 6 mm de diamètre pour 12 mm de long. La solution a été l'utilisation d'un objet servant classiquement à la régulation de la pression de pore des montages de très petite taille se composant de deux cylindres se vissant l'un à l'autre et possédant une entrée et une sortie pour permettre l'écoulement (Figure 70). Ce régulateur de pression est complété par deux vannes permettant d'isoler l'échantillon pendant l'altération.

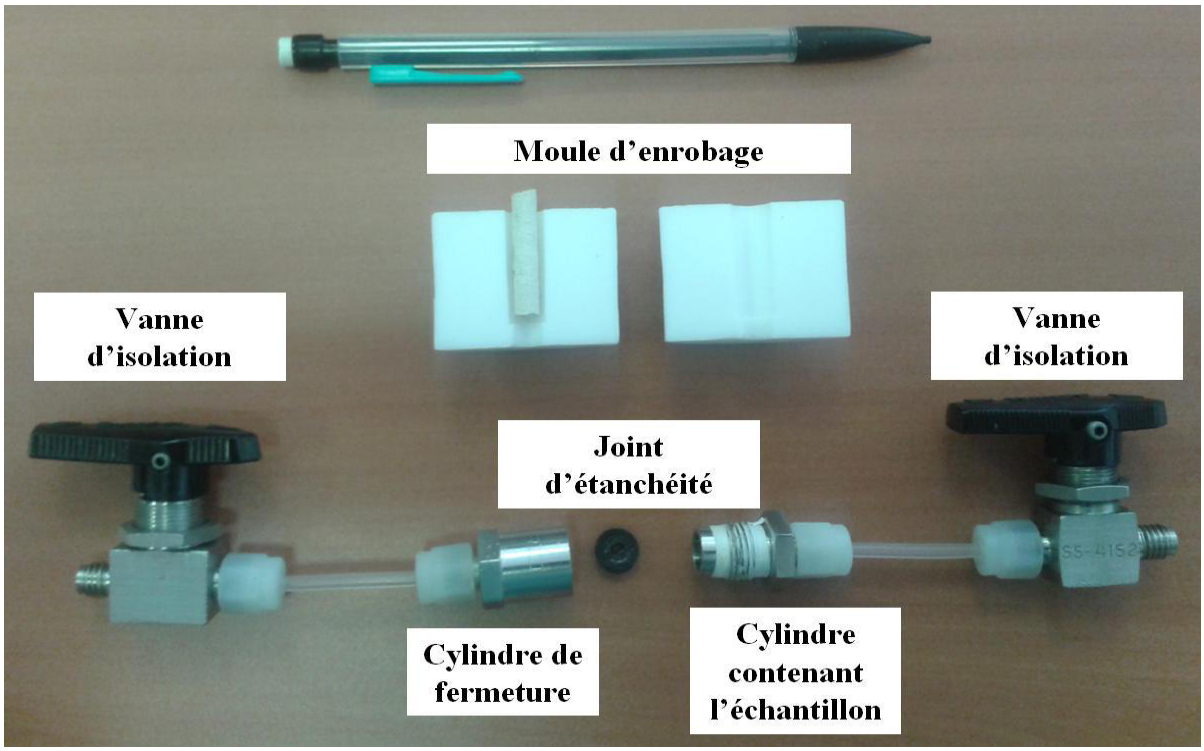


Figure 70 : Dispositif d'enrobage et d'altération d'échantillons de 5 mm de diamètre

Comme il nous était impossible d'appliquer un confinement à l'ensemble, nous avons enrobé les échantillons dans de la résine Epoxy à l'aide d'un moule taillé dans du Teflon. Nous avons pris garde à ne pas la faire pénétrer dans le milieu poreux en appliquant une fine pré couche de résine fortement visqueuse. On a assuré l'étanchéité de l'ensemble découpant des petits joints pour l'entrée et la sortie de l'échantillon dans une membrane Viton. Cependant, du fait 1) de la très petite taille des échantillons, 2) de l'impossibilité de venir lécher la face d'entrée pour enlever l'acide, 3) du manque de contrôle de la pression de pore nous avons essuyé de nombreux échecs. Malgré un débit d'injection de l'acide à froid très faible, nous avons observé un grand nombre de wormholes allant d'un bout à l'autre de l'échantillon, comme on peut le voir sur la Figure 71 qui présente l'altération d'un micro échantillon. Le wormhole et sa ramification comme chemin d'écoulement préférentiel et de dissolution est isolé et visible en 3D dans la Figure 71.c.

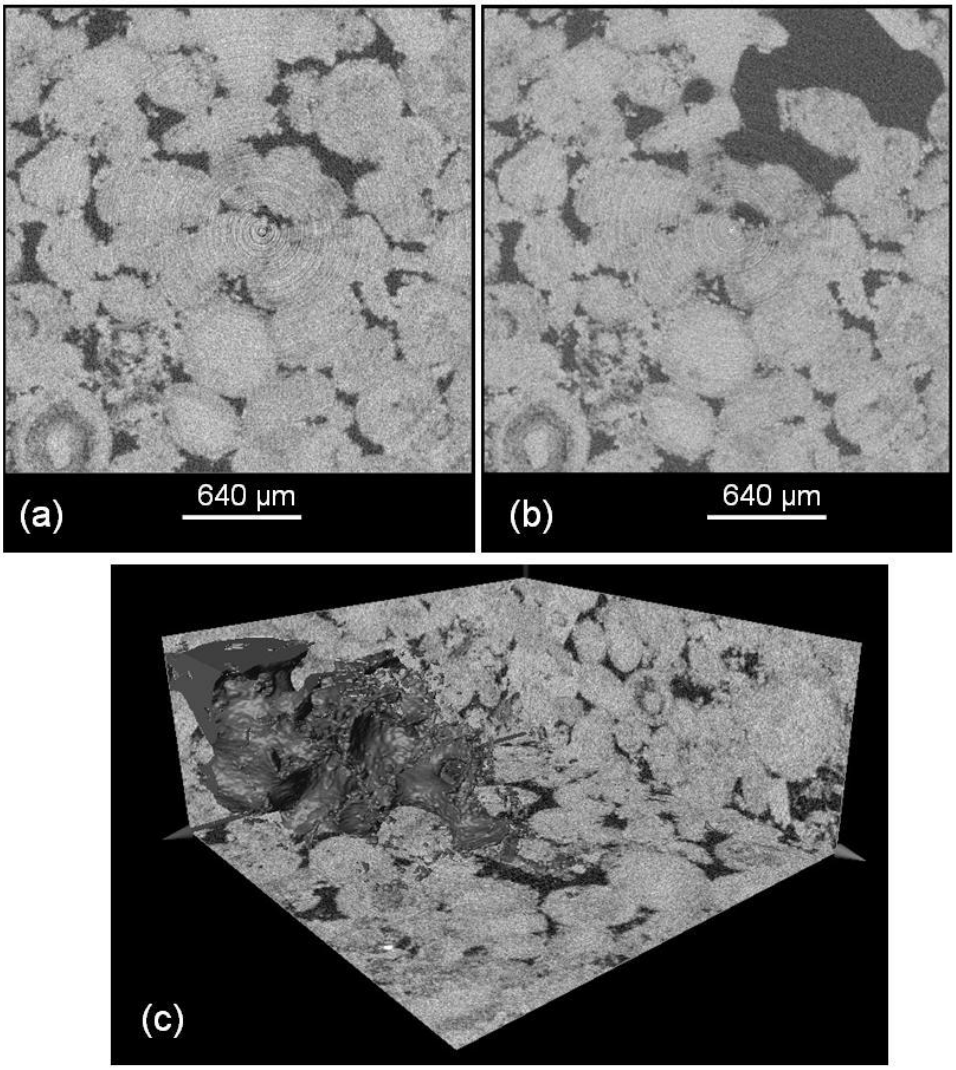


Figure 71 : a)image initiale b) image de l'échantillon après altération c) vue 3D du wormhole

La montée en pression de pore induite par l'altération a entraîné la fracture de l'échantillon au contact avec la résine. Finalement après une dizaine d'essais, nous avons pu étudier deux échantillons : enrob5 et enrob6 altérés six fois chacun. Le protocole que nous avons suivi a été le suivant :

-L'échantillon est saturé dans la mini-cellule à la saumure et un écoulement de 6 ml/h est appliqué.

-On injecte l'acide retard à une vitesse de 4 ml/h à l'aide d'une pompe Pharmacia à double piston en s'assurant que l'ensemble composé de la cellule et des deux vannes amont et aval est immergé dans de l'eau froide. Un débit plus important a systématiquement induit un phénomène de wormholing, certainement dû à une réactivité résiduelle de l'acide (malgré son tamponnage) encore forte.

-Une fois les trois volumes poreux injectés (environ 10 minutes d'injection) on retire les tubages reliant la cellule aux vannes aval et amont. La pression de pore au sein de l'échantillon n'est pas conservée, mais on peut nettoyer entièrement les deux tubages, limitant ainsi la quantité d'acide résiduel pouvant diffuser des tubages vers l'échantillon (la quantité de liquide contenu dans les tubages représentant presque 3 à 4 volumes poreux). On sature ensuite en saumure l'amont et l'aval de l'échantillon à l'aide d'un pompe Isco régulée en pression à 10 bar.

-On ferme les vannes amont et aval, et l'on place l'ensemble dans l'étuve à 60°C.

-Après une nuit d'altération, on plonge l'ensemble (toujours fermé) dans un bain d'eau du robinet pour refroidir l'ensemble métallique et stopper l'action d'un éventuel résidu d'acide. Une fois la température diminuée, on nettoie l'échantillon en injectant de la saumure à un débit de 3 ml/h.

III.3-B-b) Méthode de soustraction d'images

L'utilisation d'un microscanner RX couplée à d'autres méthodes d'imagerie pour obtenir des propriétés pétrophysiques dont les analyses sont souvent plus coûteuses que de l'imagerie est maintenant couramment utilisée dans l'industrie pétrolière (Ghous *et al.*, 2008; Sarker et Siddiqui., 2009; Sok *et al.*, 2010; Madonna *et al*., 2013)

Dans notre cas, nous nous intéressons à la caractérisation des particules fines restées dans la porosité après l'altération. Le processus d'identification des fines repose sur un principe de soustraction entre l'image du volume à l'état altéré et du volume à l'état initial. Ce type d'analyse est en pleine expansion et d'autres méthodes de soustraction d'images sont possibles (Qajar *et al.*, 2013) La première étape consiste à filtrer nos images pour minimiser le bruit en appliquant une moyenne glissante qui applique à chaque voxel une valeur de niveau de gris issue de la moyenne des 27 ou 125 voxels voisins au choix de l'utilisateur. Cette procédure permet de mieux faire ressortir les pics associés à la macroporosité et à la macroporosité (Youssef *et al*., 2008).

Dans un second temps, afin d'assurer une bonne soustraction d'image, il est nécessaire que l'histogramme des niveaux de gris des deux images soit : 1) contenu dans les mêmes bornes, 2) que les maxima des pics qui correspondent à la microporosité et à la macroporosité (s'ils apparaissent séparément) soient à la même valeur de niveau de gris. Sans cette précaution la soustraction d'image ne permettra pas d'effacer la microstructure dont les niveaux de gris

n'ont pas évolué avec l'altération. La différence entre deux histogrammes d'un même volume vient des différences de conditions d'acquisition entre l'image du volume initial, et l'image du volume altéré. Bien que nous ayons effectué les réglages de l'appareil pour conserver des conditions d'acquisition identiques, d'autres facteurs difficiles à maîtriser, comme l'état d'usure du filament ou les conditions thermiques de la pièce, induisent des changements parfois importants entre les deux images. Cette différence est illustrée par deux histogrammes de niveaux de gris de l'échantillon enrob5 montrés dans la Figure 72.

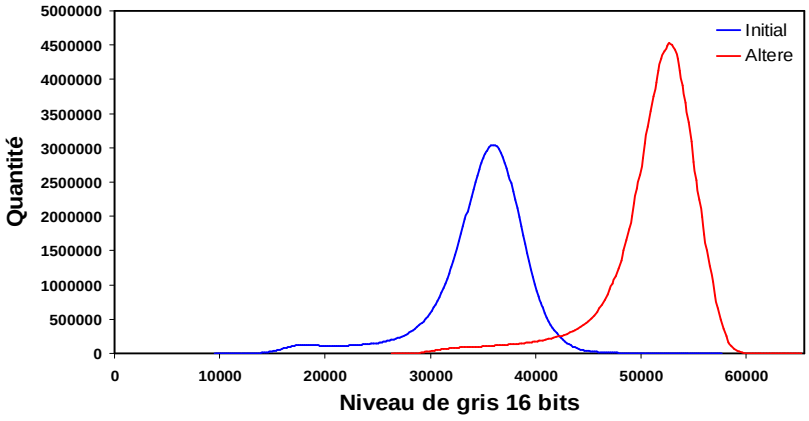


Figure 72 : Exemple des deux histogrammes avant traitement entre l'état sain et l'état altéré six fois de l'échantillon enrob5

Afin de superposer ces histogrammes nous avons calé dans un premier temps le ou les pics majeurs correspondant à la macroporosité et la phase solide du matériau. Dans notre cas, nous n'avons pu réaliser le calage de nos échantillons qu'à partir d'un seul pic bien défini. On a soustrait au niveau de gris de l'échantillon altéré la valeur de 26360. Une fois ce premier calage effectué, on remarque (Figure 73) que les histogrammes n'ont pas nécessairement la même largeur.

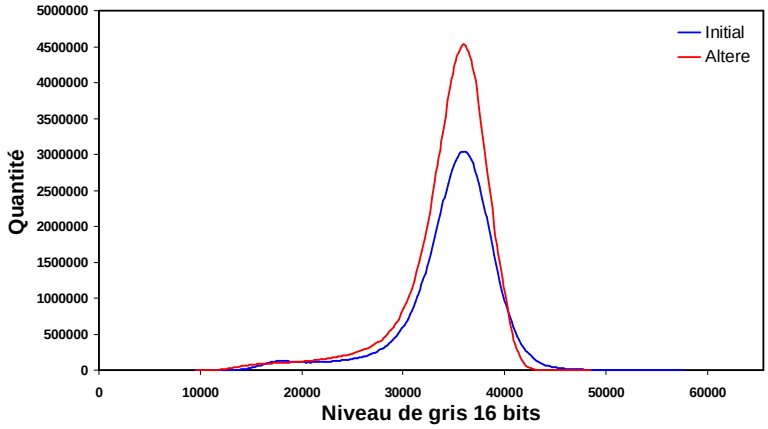


Figure 73 : Histogrammes de la Figure 72 calés sur le maximum du pic unique observé

On va alors condenser l'histogramme le plus large jusqu'à le superposer avec l'histogramme le plus étroit (*i.e.* contenant moins d'information). La méthode utilisée dans cet exemple se déroule en plusieurs étapes. Les niveaux de gris sont convertis en format 16-bits signé, ce format permet l'existence de niveaux de gris négatifs en restreignant les niveaux de gris entre -32768 et +32768. Ce changement de format effectué, on soustrait aux deux histogrammes la valeur du niveau de gris du pic maximum, afin de centrer les histogrammes en 0. On multiplie alors par un coefficient qui va condenser l'histogramme de l'échantillon altéré. Dans notre cas, ce coefficient a été de 0,87. On obtient alors la courbe des histogrammes suivante dans la Figure 74 :

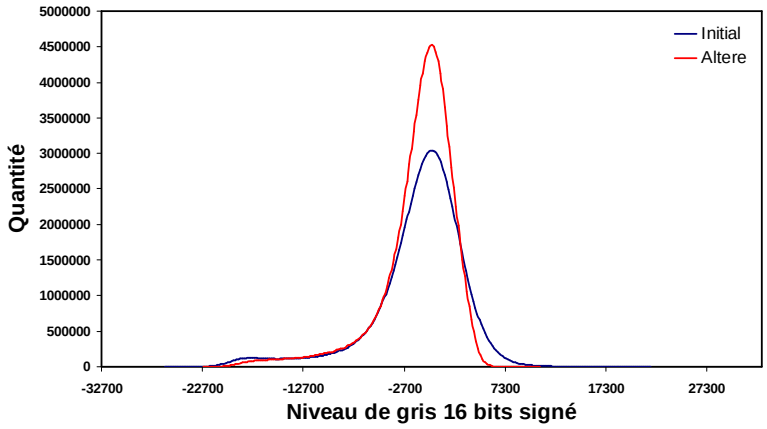


Figure 74 : Courbes des histogrammes de niveau de gris après application du coefficient correctif

Une fois ce calage des niveaux de gris réalisé, on applique une méthode de routine intégrée au logiciel AVIZO appelée la "registration" permettant de caler spatialement les images entre elles. On obtient ainsi la transformation nécessaire à appliquer à une image pour être parfaitement superposée à l'image servant de référence. Dans le cas de l'échantillon enrob5, la

transformation initiale était trop importante pour être automatisée et une première transformation a été appliqué manuellement par l'utilisateur puis automatisée (Tableau 6) :

Tableau 6: valeurs des transformations à appliquer pour le recalage manuel des deux volumes de l'échantillon enrob5

Recalage manuelle	X	Y	Z
translation de (en voxel) :	**195**	**95**	**80**
Rotation de (en °):	**4**		
Déformation des voxels	**1,08**	**1,08**	**1,08**
Recalage automatique	X	Y	Z
translation de (en voxel) :	**-14,4**	**-14,3**	**18,84**
Rotation de (en °):	**2**		
Déformation des voxels	**1,048**	**1,048**	**1,048**

L'application de ces transformations au volume de l'échantillon altéré a induit une dilatation isotrope des voxels de valeur d'environ 10% (x 1,12). Ce problème peut être évité si on contrôle strictement la résolution lors de l'acquisition. Cependant, l'image initiale de l'échantillon enrob5 et enrob6 avait été réalisée au microtomographe du laboratoire Navier car le tomographe de l'IFPEN n'était pas fonctionnel. Le volume de l'échantillon altéré aurait donc dû être acquis au même microtomographe, ce qui a été le cas, mais avec une source RX différente après maintenance. Cette dernière ne permettant pas d'avoir la même distance source-échantillon que lors de la première acquisition nous avons une différence de résolution entre les deux volumes. Cette différence de résolution est corrigée par la dilatation isotrope des voxels de l'image de l'échantillon altéré, mais cela crée de l'information *ex nihilo* qui se traduit par des artefacts en bordure de grains.

Une fois ces étapes réalisées, on applique les transformations des niveaux de gris à nos images. Afin de réaliser la soustraction d'image, on s'assure que les images sont codées en 16 bits signé, ce format permet en effet d'avoir des valeurs de niveau de gris négatives. On obtient ainsi un volume issu de la soustraction de nos deux images dont les voxels les plus blancs sont signes d'une disparition et les plus noirs d'une apparition de matière comme le montre la Figure 75.c et f. On observe très clairement sur cette figure une particule en déplacement au sein du macropore entre les images de la roche saine et altérée Figure 75.a, b, d, e. Ce déplacement est démontré par la disparition locale associée à une apparition locale, apparaissent respectivement en noir et blanc très contrastés dans l'image issue de la soustraction. On a ensuite cherché à seuiller ces extrêmes afin de localiser ces particules sur l'ensemble du volume imagé. Enfin, cette image soustraite a aussi été segmentée et îlotée afin de pouvoir quantifier le nombre de particules déplacées.

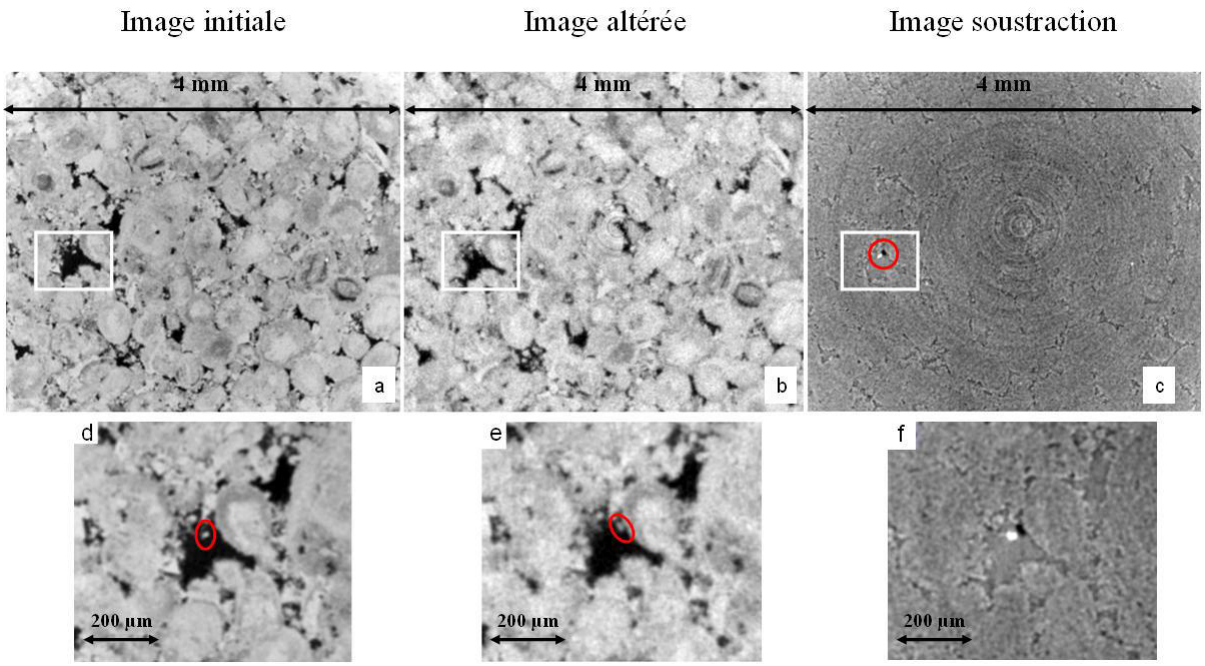


Figure 75:Exemple de mise en évidence d'une particule fine bloquée dans un macro pore à une résolution de 5,9 µm.

Le résultat du seuillage présenté dans la Figure 76 montre en bleu les disparitions de matière et en rose les apparitions de matière. Les deux colonnes de couleur bleue que l'on observe aux deux coins inférieurs de l'image sont induites par un effet de découpe du volume altéré après la procédure de registration. Une partie de l'image contient alors l'extérieur de l'échantillon, ces colonnes ne correspondent pas à une dissolution "physique réelle". On remarque la présence à la face de sortie de petits wormholes dont l'étendue spatiale est réduite. On note par ailleurs une oolithe particulière qui a été fortement dissoute visible comme une sphère bleue dans l'image, l'analyse plus précise de cette oolithe montre qu'il y a en son sein un agglomérat de particules visibles en rose, correspondant à une accumulation de particules fines restées bloquées dans le réseau poreux interne à cette oolithe. Cette observation est intéressante, car elle prouve la dissolution de la micrite au sein des oolithes, ce que l'on supposait être à l'origine de l'augmentation de 0,4% de porosité par cycle d'altération de notre roche. Ce processus a certainement lieu dans l'ensemble des zones microporeuses de la roche, mais du fait de la résolution limitée du microtomographe, nous n'avons pu le mettre en évidence que dans le cas d'une microstructure plus « grossière », comme celle-ci, avec de grandes oolithes très fortement poreuses (dont la microstructure peut être assimilée à l'image MEB présentée partie III.1-A)) et dont le volume pouvant contenir du fluide est plus grand. Les exemples que nous avons identifiés de mouvement de particules au sein de l'échantillon ne peuvent êtres à l'origine de la diminution de la perméabilité car ils sont trop peu nombreux

au regard du volume. Cependant, ces indices prouvent l'existence de ces particules qui sont d'après les résultats de l'HORIBA pour la plupart en dessous de la résolution du microtomographe. Il est possible de formuler l'hypothèse de l'existence d'agglomeras de particules fines qui bouchent réellement les seuils d'accés aux pores mais dont la résolution spatiale est trop faible pour être mise en évidence avec nos moyens techniques d'imagerie.

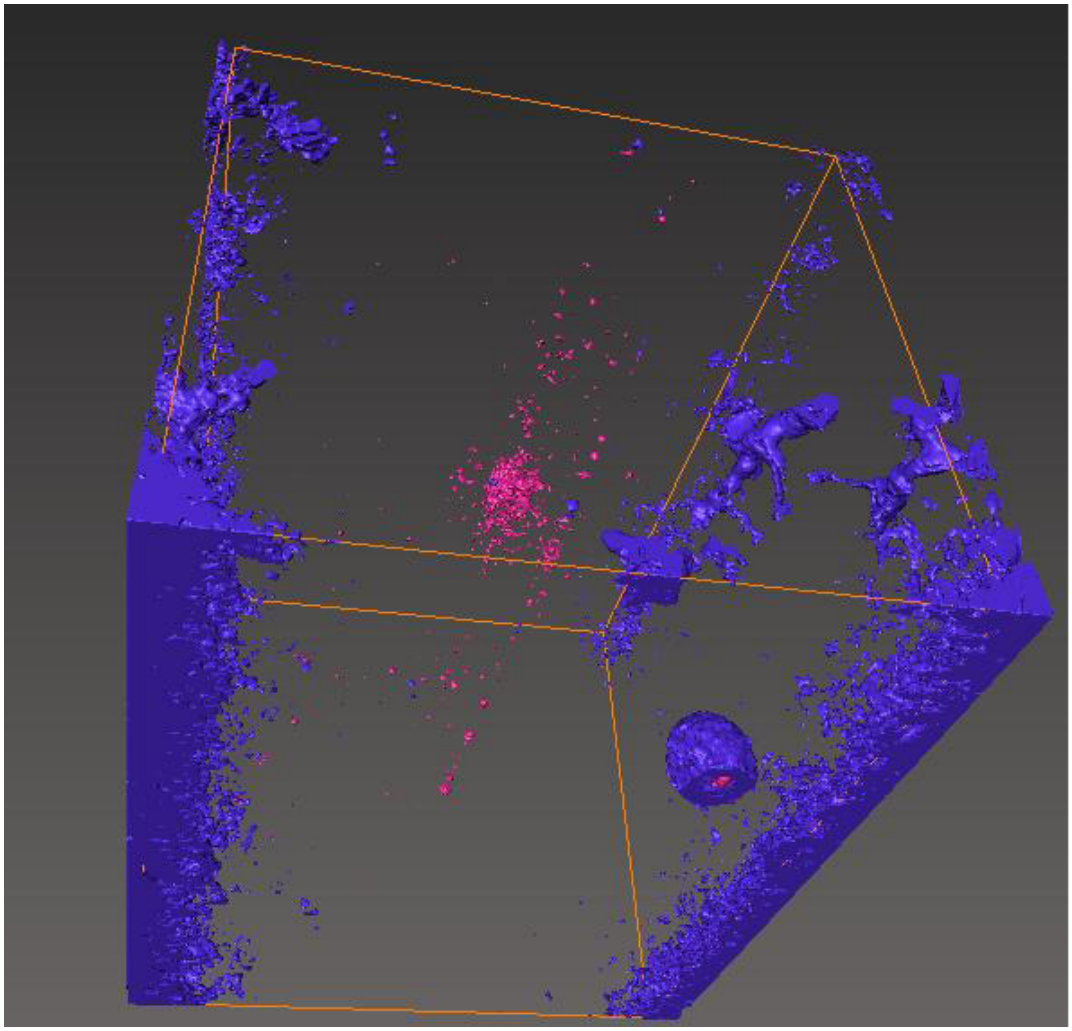


Figure 76 : résultat du seuillage après soustraction d'image. En bleu la matière disparue et en rose la matière apparue

IV Résultats macroscopiques à l'aide d'essais triaxiaux et CIN-2D macroscopique

Sommaire

IV RESULTATS MACROSCOPIQUES A L'AIDE D'ESSAIS TRIAXIAUX ET CIN-2D MACROSCOPIQUE 139

IV.1- ÉVOLUTION MECANIQUE DU CALCAIRE DE LAVOUX A L'ECHELLE MACROSCOPIQUE 141

IV.1-A) Essais à faible confinement : évaluation des modules élastiques 141

IV.1-B) Comportement mécanique à la rupture 145

IV.2- APPLICATION DE LA CIN 2D MACROSCOPIQUE 150

IV.2-A) Méthode d'estimation et de minimisation des erreurs 151

IV.2-B) Exemples de cartographie 154

IV.2-B-a) Les échantillons sains 156

IV.2-B-b) L'échantillon altéré trois fois 160

IV.2-B-c) Les échantillons altérés six fois 162

IV.2-B-d) Modes de rupture des trois types d'échantillons 165

IV.2-B-e) Discussion sur ces observations 166

IV.2-C) Discussion des courbes et des modules obtenus par CIN 166

IV.2-C-a) Courbe des déformations moyennes pour l'échantillon sain 167

IV.2-C-b) Courbe des déformations moyennes pour l'échantillon altéré trois fois 168

IV.2-C-c) Courbe des déformations moyennes pour l'échantillon altéré six fois 169

IV.2-C-d) Conclusion sur les essais macroscopiques et les trois essais de CIN 2D optique 171

IV.1-Évolution mécanique du calcaire de Lavoux à l'échelle macroscopique

Les résultats de la campagne d'essais triaxiaux ont été obtenus sur des échantillons provenant du bloc LGF. L'ensemble des modules calculés dans la phase élastique du chargement sera comparé à ceux publiés dans la littérature et discuté. Les résultats de la partie triaxiale de nos essais seront présentés en deux parties. La première traitera de l'évolution générale des courbes de chargement pendant les essais en fonction du confinement, la seconde s'intéressera à l'évolution des contraintes à la rupture des échantillons dans un diagramme P'-Q, afin d'analyser l'effet de l'altération sur le comportement macro mécanique de notre roche.

IV.1-A)Essais à faible confinement : évaluation des modules élastiques

Nous allons, dans un premier temps, présenter les résultats portant sur les coefficients de Poisson et les modules de Young effectifs drainés de nos échantillons établis sur dix essais mécaniques à faible confinement (2 MPa), dans la phase de chargement élastique (*cf* II.3-A-c)), avant la montée en pression hydrostatique jusqu'à la valeur de confinement souhaitée pour les essais triaxiaux. On rappelle notre protocole d'essais triaxiaux dans la Figure 77 et la partie de ce protocole permettant d'accéder aux données présentées dans le Tableau 7.

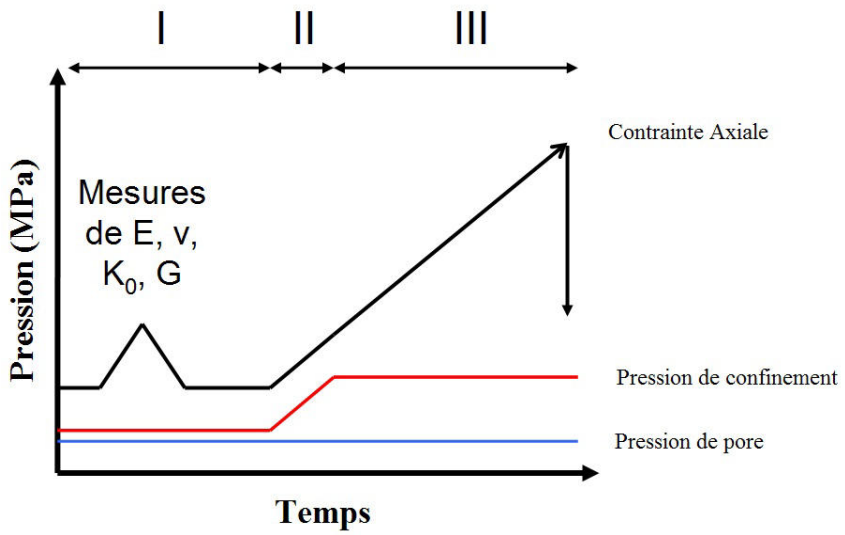


Figure 77: rappel du protocole d'essais triaxiaux et de la partie permettant la mesure des modules élastiques

On rappelle par ailleurs les équations nous permettant d'obtenir les valeurs de ces modules effectifs décrits dans la section II.3-A-c) :

$$E = \frac{\Delta\sigma_a}{\Delta\varepsilon_a} \quad (16)\ ; \quad \nu = -\frac{\Delta\varepsilon_r}{\Delta\varepsilon_a} \quad (17)\ ; \quad K_0 = \frac{\Delta p'}{\Delta\varepsilon_v} \quad (18) \text{ et } G = \frac{1}{3}\cdot\frac{\Delta q}{\Delta\varepsilon_d}$$

Aucune mesure de module n'est effectuée pendant le chargement hydrostatique car la réponse des jauges de déformation ne le permet pas. La réponse des jauges en fonction des trois étapes du protocole est présentée dans la Figure 78 pour LGF_21. La réponse des jauges dans la partie II de cette figure n'est visiblement pas linéaire et ne permettrait pas de mesurer des modules.

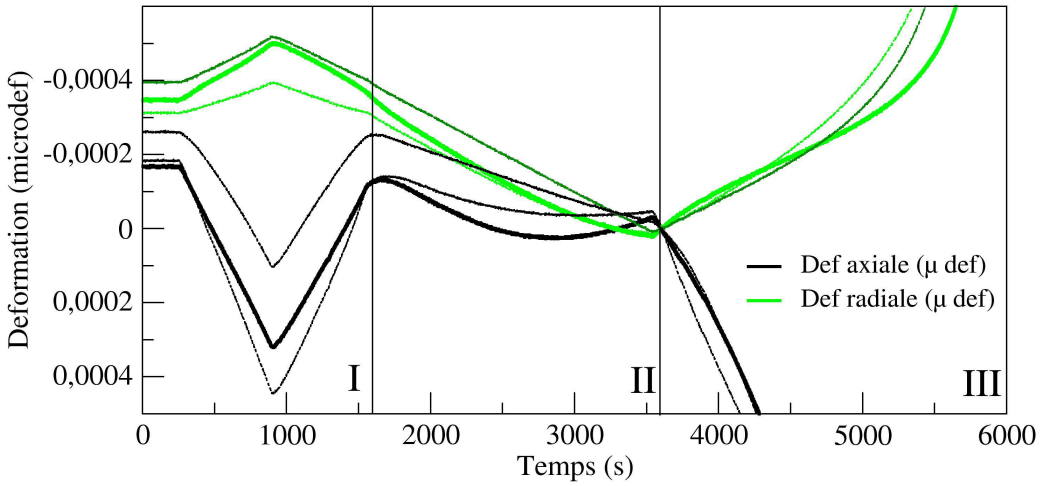


Figure 78 : réponse des jauges de l'échantillon LGF_21 pendant l'essai, les chiffres I, II, III représentent les trois étapes du protocole.

Les résultats, résumés dans le Tableau 7, sont discutés en considérant les porosités moyennes des échantillons avant et après leur altération. Le module d'Young montre une diminution avec l'altération, sa valeur moyenne étant de 22,0 ± 3,8 GPa, de 19,2 ± 0,8 GPa et de 15,1 ± 1,4 GPa pour les échantillons sains, pour les échantillons altérés trois fois et pour les échantillons altérés six fois. La perte de rigidité de notre matériau peut être expliquée en première approche par l'augmentation progressive de la porosité résultant de l'altération. Les évolutions du coefficient de Poisson sont moins claires, ce qui peut être expliqué par le fait que cette donnée dépend de la déformation radiale de l'échantillon, qui est faible, et dont la mesure peut être entachée d'une erreur, du fait de la rugosité de la surface de l'échantillon sur laquelle sont collées les jauges. La mesure axiale peut aussi être entachée de cette erreur, cependant, la déformation étant plus importante le bruit induit par cet effet est moins

important. Les valeurs du coefficient de Poisson sont cependant toutes comprises entre 0,22 et 0,32 ce qui est une gamme de valeurs cohérente pour les carbonates, mais le coefficient de Poisson ne présente pas d'évolution nette avec l'altération.

Devant l'absence de tendance montrée par le coefficient de Poisson, nous avons évalué les modules effectifs d'incompressibilité drainés K_0 et de cisaillement G, en fonction de l'augmentation de la porosité. On rappelle que les valeurs de K_0 et G sont évaluées à partir des quantités mesurées par les jauges et la cellule de force et non pas calculées à partir du module d'Young et du coefficient de Poisson bien que les résultats obtenus par les deux méthodes de calculs ne montrent pas de différence significative.

Les résultats présentés dans le Tableau 7 montrent qu'en moyenne le module d'incompressibilité et le module de cisaillement diminuent plus fortement entre trois et six cycles d'altération qu'entre zéro et trois cycles.

Tableau 7 : récapitulatif des modules élastiques obtenus aux différents niveaux d'altération

Echantillon	Nombre d'altération	Φ_{ini} (%)	Φ_{Alt} (%)	v	E (GPa)	G (GPa)	K0 (GPa)
LGF_13	0	24,4	-	0,26	18,3	7,2	12,8
LGF_16	0	24,1	-	0,28	25,8	7,5	10,2
LGF_18	0	24,2	-	0,24	21,9	8,8	13,9
LGF_48	3	23,4	24,6	0,22	19,4	8,0	11,7
LGF_10	3	23,8	25,3	0,28	20,0	7,0	11,6
LGF_21	3	24,1	25,6	0,25	18,2	7,3	11,9
LGF_9	6	24,1	26,6	0,27	13,4	5,3	9,8
LGF_11	6	23,7	26,5	0,32	16,5	6,6	8,0
LGF_51	6	23,7	26,1	0,25	14,6	4,9	8,7
LGF_17	6	23,9	26,3	0,24	15,8	6,4	10,1

Afin de mieux visualiser l'évolution des modules élastiques et la comparer à l'évolution linéaire de la porosité avec l'altération, on représente dans la Figure 79 la moyenne des valeurs de la porosité, du coefficient de Poisson, ainsi que des modules de Young, d'incompressibilité et de cisaillement, normalisés par leurs valeurs moyennes à l'état sain, en fonction du nombre d'altérations. Cette normalisation s'exprime par la formule suivante :

$$Y = \left| \frac{X_i - X_0}{X_0} \right| \times 100 \qquad (40)$$

avec Y l'écart par rapport à la moyenne à l'état initial d'une propriété en pourcent, X_0 la moyenne de la propriété choisie à l'état sain et X_i la valeur moyenne d'une propriété à un état d'altération donné.

On observe que seule l'évolution de la porosité est presque linéaire avec l'altération. En revanche les évolutions de E, K_0 et G apparaîssent comme non linéaires. Cette observation peut être modérée au regard des barres d'erreur de plus ou moins un écart type, néanmoins le faible nombre de mesures ne permet pas une analyse statistique fiable.

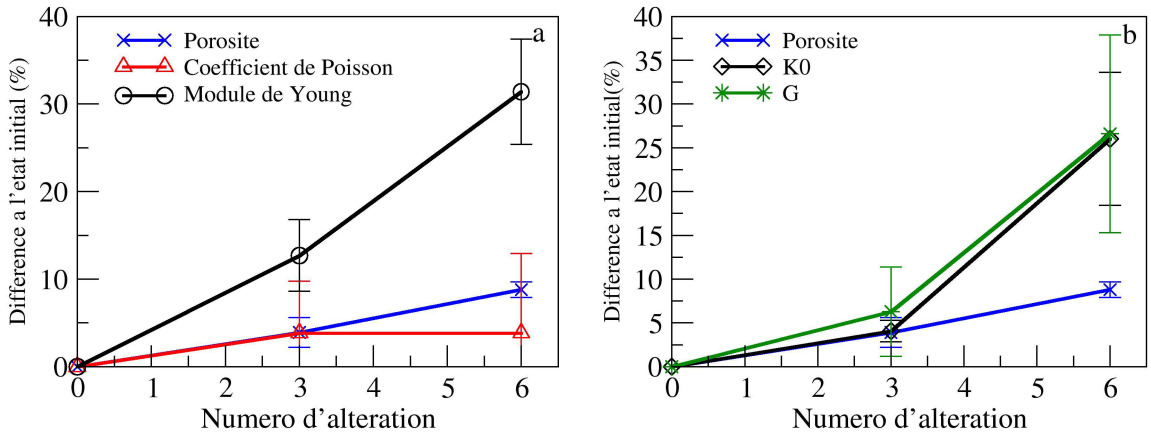


Figure 79: a) évolution du module d'Young et du coefficient de Poisson normalisé par la valeur à l'état sain b) évolution de K_0 et G normalisé par la valeur à l'état sain. On rappelle l'évolution linéaire de porosité moyenne des échantillons de façon systématique

La tendance d'évolution non linéaire de la diminution de ces modules suggère que l'augmentation de porosité n'est pas l'unique facteur à prendre en considération pour expliquer l'évolution des propriétés mécaniques de notre roche. Pour confirmer cette hypothèse, nous avons affiché nos données avec celles compilées par Bemer et Lombard (2010) et issues de différents carbonates avec différentes porosités, dans des diagrammes présentant les modules mécaniques en fonction de la porosité. Nos échantillons ajoutent des données dans une gamme de porosité plus élevée. Le modèle d'homogénéisation utilisé pour cette courbe est développée dans Bemer *et al.*, (2004), sur la base des bornes de Hashin et Shtrikman (Hashin et Shtrikman, 1963) et couplé au modèle de Boutéca, (1992). Cette représentation est visible sur la Figure 80, où on observe que le module d'incompressibilité de nos carbonates reste dans la moyenne pour les échantillons sains et altérés trois fois (en rouge), mais qu'il se rapproche de la borne inférieure pour les échantillons altérés six fois (en orange). Ces résultats sont identiques à ceux obtenus sur le calcaire d'Euville sain et altéré selon le même protocole que dans nos expériences. Lorsque l'on s'intéresse au module de cisaillement, on observe que les données pour les échantillons sains et altérés trois fois restent aussi dans les limites établies par ce modèle. Cependant, les valeurs de G pour les échantillons altérés trois fois sont proches de la limite inférieure, alors que celles pour les

échantillons altérés six fois sont clairement en dehors de la tendance générale. Encore une fois, ces résultats sont similaires à ceux présentés par les auteurs. Il semblerait donc que d'une part l'altération chimique de nos carbonates affecte plus fortement le module de cisaillement, et que d'autre part la porosité après altération ne puisse plus être reliée aux modules mécaniques par la modélisation utilisée par Bemer *et al.*, (2004). Cette observation peut s'expliquer par le fait que l'augmentation de porosité dans notre cas est induite par un processus chimique qui n'est pas nécessairement une représentation parfaite de ce que pourrait être une dissolution chimique induite par une fluide sous saturé en CO_2 pendant la diagenèse de la roche.

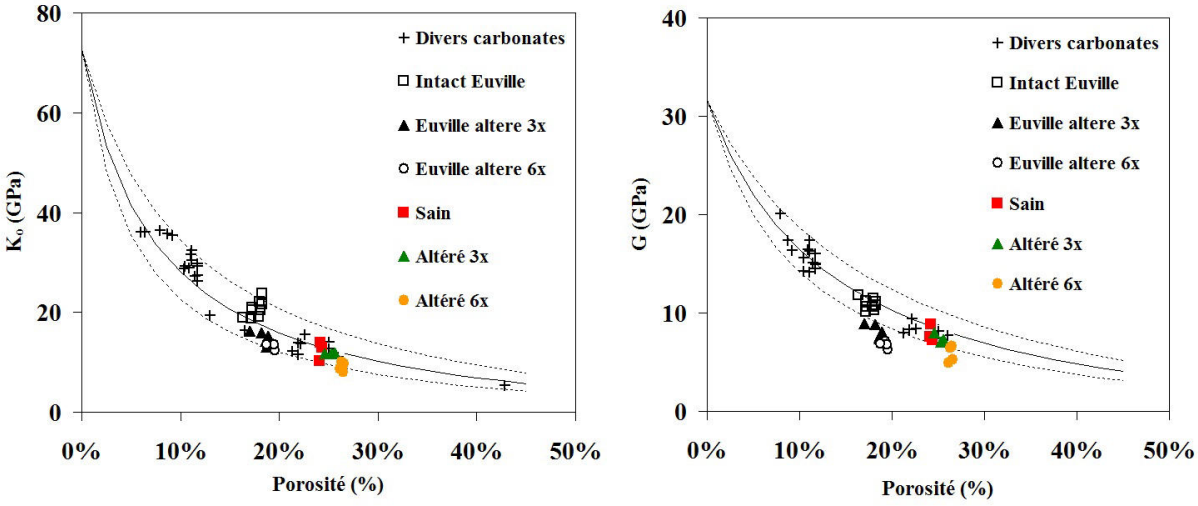


Figure 80 : a) compilation des mesures de K0 en fonction de la porosité pour des échantillons altérés et non altérés b) comparaison identique pour G. Ces mesures sont comparées au modèle de Bemer et al., 2004 qui donne les limites

IV.1-B)Comportement mécanique à la rupture

Nous allons dans cette partie nous attacher à décrire le comportement à la rupture de notre roche selon deux aspects. Le premier sera l'aspect des courbes contraintes/déformations jusqu'à la rupture de l'échantillon et le second s'attardera sur l'évolution des valeurs limites à la rupture.

Les courbes de chargement, présentant les déformations axiale et transverse mesurées de chaque échantillon en fonction de la contrainte déviatorique imposée sont données dans la Figure 82.

Les chargements réalisés à 5 MPa de pression effective (on rappelle que : $P_{eff} = P' = P_c - P_p$ avec $P_p = 1$ MPa) montrent des courbes de chargement que l'on interprète comme représentatives d'un comportement fragile, avec notamment la présence caractéristique d'un

pic de contrainte, suivi d'un adoucissement. Ce type de comportement ne semble pas affecté par l'état d'altération. Les échantillons en sortie de cellule présentent tous des fractures en cisaillement. Comme le montre par exemple un échantillon de LGG après un essai à faible confinement (2 MPa) dans la Figure 81. Cette représentation 3D de l'échantillon est issue de l'assemblage de 75 images issues du scanner et d'une interpolation bilinéaire entre les tranches. On observe l'évolution de la fracture dans le volume. Les artefacts blancs que l'on observe sont induits par les fils reliant les jauges à l'ordinateur d'enregistrement.

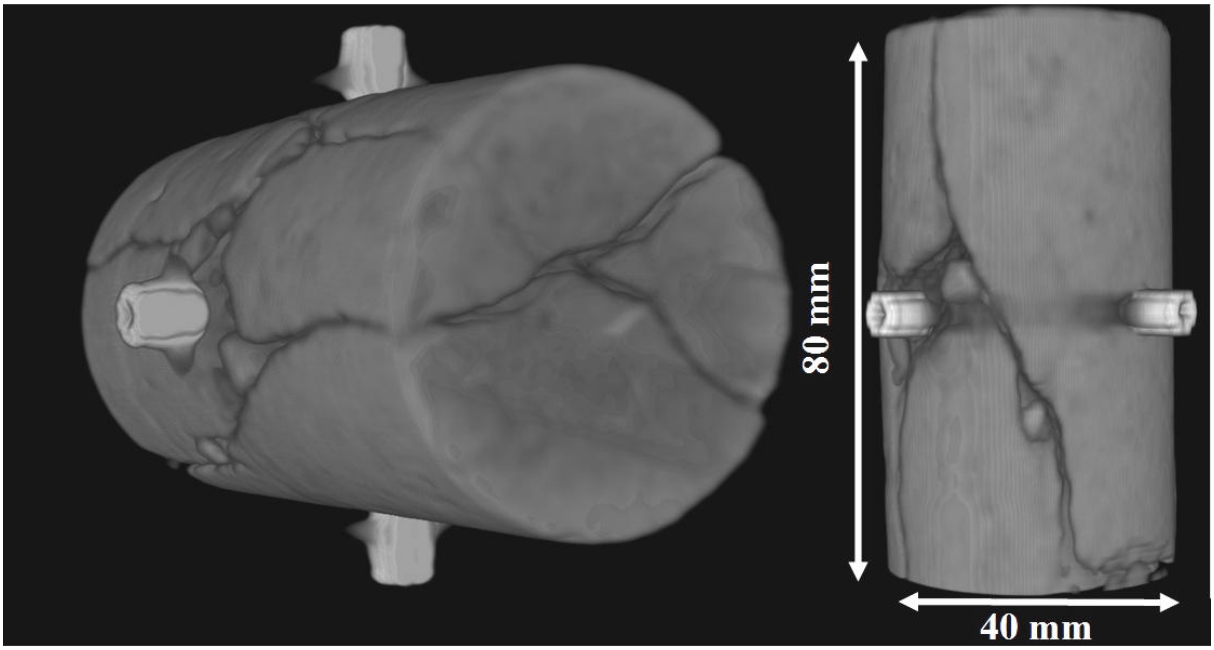


Figure 81 : aspect d'une rupture dans le domaine fragile pour un échantillon de LGG au scanner médical

Les courbes de la Figure 82 sont comparables à celles montrées dans Zhu et Wong, (1997a) sur un grès de Berea à 5 et 10 MPa de pression effective, aux résultat obtenus sur un grès des Vosges par Bésuelle, (2001) ainsi que par Cilona *et al.*, (2012) dans un carbonate de Orfento à faible confinement (5 MPa). Cette liste d'exemples n'est pas exhaustive.

Les courbes de chargements obtenues pour 10 MPa de pression effective montrent un comportement fragile avec des pics de contraintes pour l'échantillon sain et l'échantillon altéré trois fois. Au contraire, l'échantillon altéré six fois présente une courbe caractéristique de comportement ductile, sans pic de contrainte et avec une résistance à la déformation quasi constante. Le comportement affiché par l'échantillon altéré six fois est comparable aux courbes présentée par Zhu *et al*., (2011) sur le tuf de Palatino à 10 et 20 MPa de pression effective. Ainsi que dans le carbonate de Tavel (10 % de porosité) à 100 et 150 MPa de pression différentielle présenté par Vajdova *et al*., (2004) ou bien encore dans le calcaire

d'Indiana à 20 MPa de pression de confinement (Vajdova *et al.*, 2012). Des courbes identiques ont été observées dans Zhu *et al.*, (1997a,b) à 80 MPa effective pour le grès d'Adamswiller et de Berea à 100 MPa de pression effective mais aussi dans le grès de Darley Dale (Baud *et al.*, 2006).

Enfin, les chargements réalisés à 15 MPa de pression effective montrent, pour les échantillons altérés trois et six fois, des courbes de chargement caractéristiques du régime compactant-cisaillant, sans pic de contrainte et avec durcissement progressif. L'échantillon sain semble présenter un très faible pic de contrainte suivi d'une résistance à la déformation quasi constante, ce qui indique un régime de transition entre le régime fragile et le régime ductile. Ce type de comportement plus "plastique" a pu être observé dans les grès à plus forte pression effective dans les publications citées précédemment, mais aussi dans Zhu et Wong., (1997b) dans un grès de Dale et un grès de Berea, de Bleurswiller (Fortin *et al.*, 2005) et dans divers carbonates (Indiana, Chauvigny, Tavel) visibles dans Zhu *et al.*, 2010.

Une publication compilant une grande quantité de données sur les évolutions du domaine fragile au domaine ductile de rupture pour des grès et des carbonates peut permettre de retrouver la plupart des courbes qui ont servi de base de comparaison à notre étude (Wong et Baud, 2012).

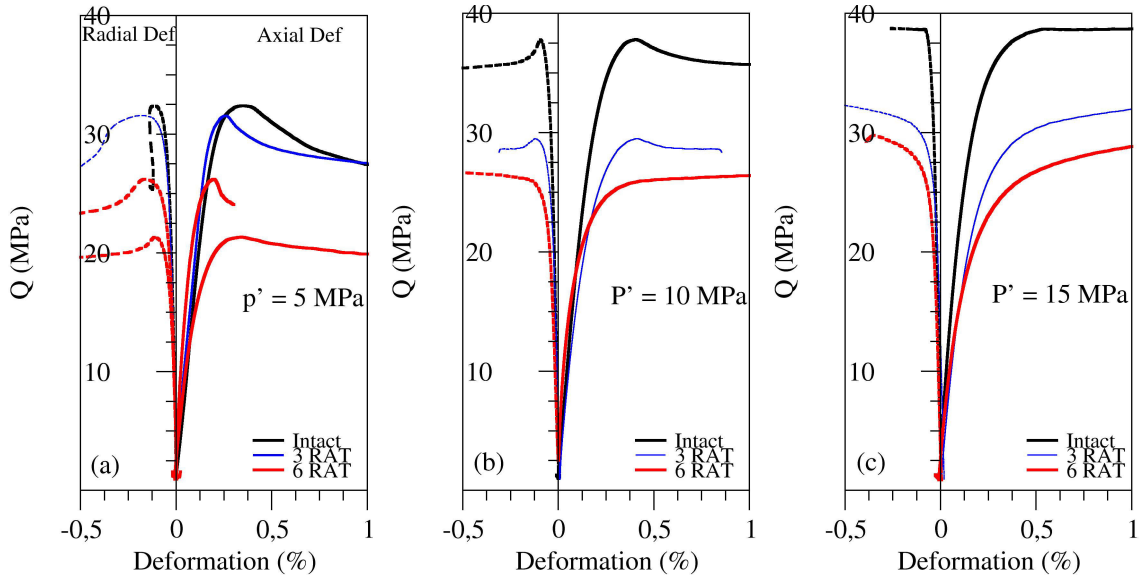


Figure 82 : courbes contraintes/déformations obtenues pour des échantillons sains, altérés 3x et altérés 6x à trois pressions effectives différentes

Nous avons ensuite déterminé les pressions effectives critiques (C*) et les contraintes déviatoriques maximales (Q*). La valeur de Q* est obtenue à partir du pic de contrainte dans le régime de rupture fragile et à l'aide de la méthode décrite dans la section II.3-A-c) des

méthodologies expérimentales pour le régime compactant. On obtient Q* par le calcul suivant :

$$Q^* = \sigma^* - P_c \qquad (41)$$

avec Q* la contrainte déviatorique critique à la rupture, σ* la contrainte axiale à la rupture et P_c la pression de confinement.

La pression effective critique est obtenue par la formule :

$$P'^* = \frac{(\sigma^* + 2.P_c)}{3} - P_p \qquad (42)$$

avec P'* la pression critique à partir de laquelle le comportement de l'échantillon devient compactant, Q* la contrainte déviatorique maximale (obtenue à l'aide de notre méthode des tangentes), P_p la pression de pore et P_c la pression de confinement.

Les résultats obtenus sont résumés dans le Tableau 8 :

Tableau 8 : récapitulatif des valeurs de contraintes déviatoriques maximales et de la pression effective critique pour des échantillons sains, altérés 3x et altérés 6x à trois niveaux de confinement

Echantillon	Nombre d'altération	Φ_{ini} (%)	Φ_{Alt} (%)	Pc (MPa)	Q* (MPa)	P'* (MPa)
LGF_13	0	24,4	-	6	32,4	15,7
LGF_16	0	24,1	-	11	37,9	22,5
LGF_18	0	24,2	-	16	37,3	27,3
LGF_48	3	23,4	24,6	6	31,6	15,7
LGF_10	3	23,8	25,3	11	29,5	19,9
LGF_21	3	24,1	25,6	16	28,5	24,8
LGF_9	6	24,1	26,6	6	21,4	12,2
LGF_11	6	23,7	26,5	6	26,2	13,7
LGF_51	6	23,7	26,1	11	24,1	18,3
LGF_17	6	23,9	26,3	16	22,3	22,6

On observe que pour chaque état de confinement l'altération entraîne systématiquement une diminution des valeurs de contraintes Q* à la rupture. Il est important, cependant, de faire deux remarques.

La première concerne la valeur de contrainte à la rupture de l'échantillon LGF_48 altéré trois fois, pour 6 MPa de confinement. Cet échantillon présente en effet une résistance de rupture très proche de celle de l'échantillon à l'état sain LGF_13. LGF_48 ne présente que 0,2 unités de porosité de plus que LGF_13 et les deux échantillons présentent un comportement fragile. Malgré l'augmentation de porosité mesurée, l'altération à trois cycles n'affecte pas suffisamment la microstructure du carbonate pour entraîner une différence notable de son

comportement mécanique. Il est possible que, malgré notre protocole de sélection, l'hétérogénéité initiale du matériau soit encore suffisamment importante pour que son influence masque les éventuels effets d'une altération modérée sur le comportement mécanique. Cependant, l'échelle de ces hétérogénéités doit se positionner à une résolution inférieure à celle du scanner médical qui nous a permis de réaliser la sélection des échantillons.

La seconde observation concerne l'importante différence de résistance à la rupture (4,8 MPa) entre les deux échantillons à six cycles d'altération, pour 6 MPa de confinement. Ces échantillons sont clairement moins résistants que des échantillons sains et altérés trois fois, mais leurs différences de comportement n'est pas explicable par leur faible écart de porosité (0,1%). Là aussi, il est probable que la différence du comportement à la rupture soit surtout liée aux hétérogénéités de microstructure initiales. Ces observations semblent indiquer que dans le domaine fragile les hétérogénéités locales initiales restent le facteur microstructural prépondérant de l'initiation de la rupture.

Afin de représenter graphiquement ces résultats, nous avons reporté les niveaux de rupture dans l'espace des contraintes (P'-Q), ce résultat est visible dans la Figure *83*, pour les trois états d'altération. Cette représentation permet de mieux discerner la transition qui s'opère entre les régimes fragile et ductile. Nous précisons qu'au vu du faible nombre d'expériences, la reproductibilité des résultats n'a pu être vérifiée pour chaque type d'échantillons. Aussi, une certaine prudence s'impose. Toutefois, les résultats semblent bien respecter la tendance générale décrite dans la littérature sur des carbonates non altérés (Yale et Crawford., 1998) et altérés (Bemer et Lombard., 2010; Nguyen, 2012). Malheureusement, mis à part l'effet de porosité globale, le diagramme obtenu ne permet pas d'interprétation dans le sens d'une évolution microstructurale particulière. C'est pour cette raison que les observations du comportement mécanique macroscopique sont complétées par des mesures de champs, présentées dans la suite. Cette technique, basée sur la corrélation d'images numériques (CIN) de la surface de l'échantillon, acquises au cours du chargement, permet de remonter aux déformations locales et ainsi de préciser les phénomènes de localisation, les modes d'endommagement et de rupture.

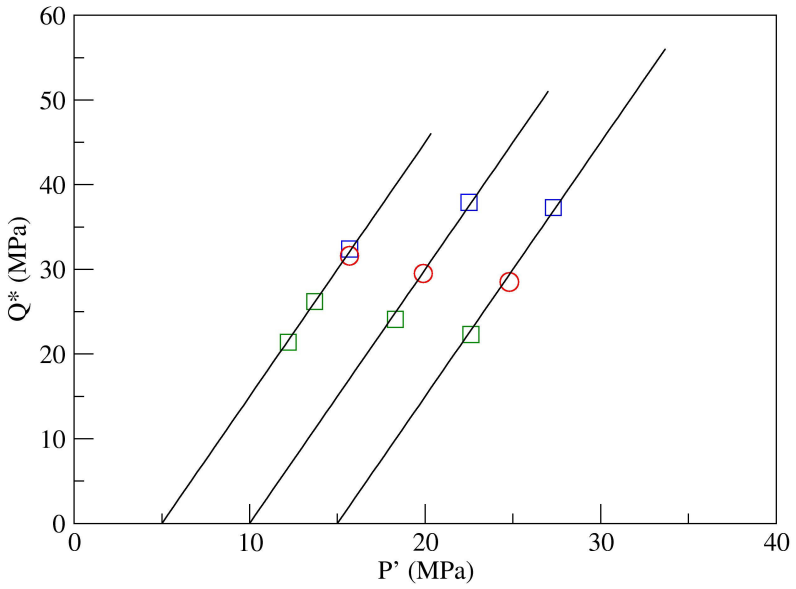


Figure 83 : diagramme P'-Q* des essais menés à trois niveaux d'altération pour trois niveaux de confinement et leur courbe de chargement théorique associée*

IV.2- Application de la CIN 2D macroscopique

Nous rappelons (voir Chapitre II.5-A)) que les échantillons, à l'origine cylindriques (diamètre 36 mm, hauteur 35 mm), sont usinés afin de réaliser sur le pourtour deux méplats d'une largeur de 26 mm et diamétralement opposés. Ce sont les surfaces planes de ces méplats qui sont observées lors du chargement mécanique. Nous rappelons aussi que cette géométrie a déjà été éprouvée dans plusieurs études menées au LMS (Valès., 2008, Dautriat *et al.*, 2011b, Yang *et al.*,2010a ; Bourcier *et al.*, 2013) dans des métaux, des carbonates et grès, des argilites et du sel respectivement. Les méplats des échantillons sont recouverts d'un fin mouchetis de peinture (50 à 200 micromètres) à la bombe aérosol (Dautriat *et al.*, 2011b; Bourcier *et al.*, 2013).

La campagne d'essais triaxiaux a montré que le calcaire de Lavoux présente de très faibles déformations globales (env. 0,5 %) à la rupture. L'étude par CIN de Dautriat (2009) du calcaire d'Estaillades a également montré de très faibles niveaux des déformations globales et locales sous chargement uniaxial. Cette étude a notamment démontré la nécessité d'évaluer précisément les erreurs systématiques et aléatoires de la méthode CIN. Il s'agit d'adapter les conditions d'acquisition de sorte à pouvoir s'en affranchir au mieux, faute de quoi l'information est masquée par le bruit.

IV.2-A) Méthode d'estimation et de minimisation des erreurs

Comme nous l'avons vu précédemment, une des principales sources d'erreurs aléatoires est liée au manque de contrastes de la surface imagée, et au bruit d'image. La première étape est donc d'améliorer les contrastes par le dépôt de marqueurs sur la surface imagée. Dans le cas des acquisitions d'images pour la CIN macroscopique, nous améliorons les contrastes locaux des surfaces par la projection de fines gouttelettes de peinture noire et blanche (mat). Ces gouttelettes sont déposées avec un aérographe fin (ouverture de buse de 200 micromètres). La décision de mettre des gouttes noires et des gouttes blanches a été prise après des essais d'évaluation des erreurs en fonction du marquage (on pourra se référer à Dautriat, 2009). Un tel marquage, trop chargé, présente le désavantage de cacher la microstructure sous la peinture. De fait, il devient compliqué de relier les localisations de déformation observées avec la microstructure sous-jacente. Pour en avoir une idée nous avons utilisé les images issues du scanner médical, qui nous indiquent d'éventuelles hétérogénéités mais la résolution spatiale des images (~120 µm par pixel) ne permet pas une analyse précise de cette microstructure. Cette dernière n'est de toute façon que difficilement observable à l'échelle macroscopique car la taille des grains n'excède pas 500 µm. La Figure 84a et b illustre pour l'échantillon LGF_A les éventuelles hétérogénéités qui, bien que de petite taille, peuvent induire des localisations préférentielles de la déformation en dehors de la surface d'observation. Les échantillons en sortie d'essai sont trop endommagés pour vérifier cette assertion à l'aide d'un scan *post-mortem* et nous n'aurions tout de même pas accès à l'historique du développement de la fracture à partir de son initiation.

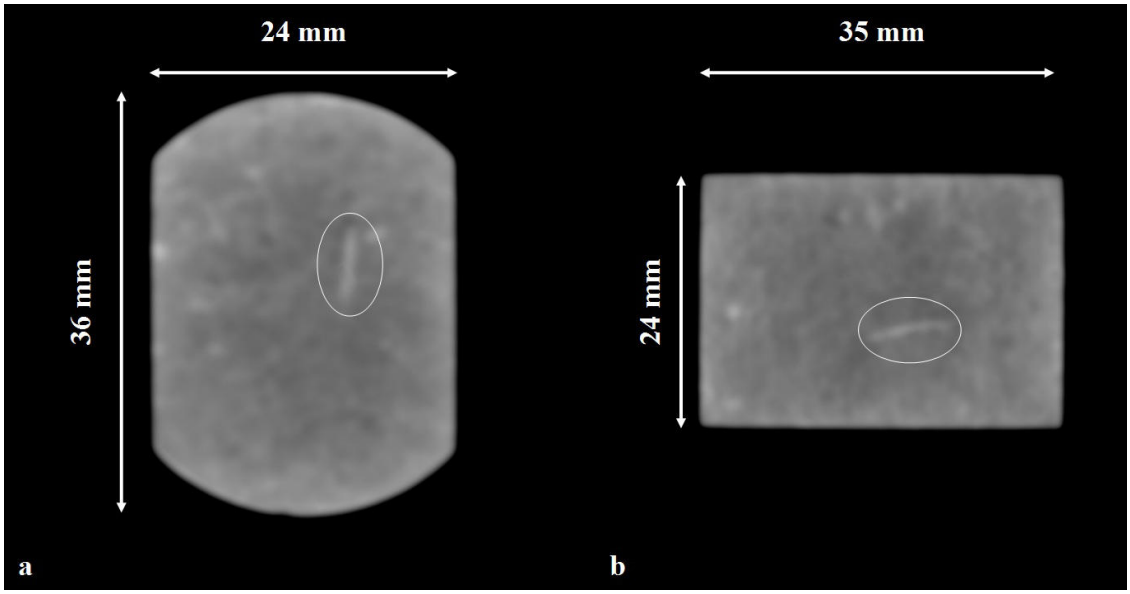


Figure 84 : vue de l'échantillon LGF_A avant essai a) en coupe axiale b) en coupe sagittale, le cercle blanc montre une hétérogénéité résiduelle après la sélection des échantillons

La deuxième étape consiste à quantifier les erreurs aléatoires et systématiques, afin d'avoir des éléments pour faire la part des choses entre véritable déformation et bruit de mesure. Pour cela, on réalise la corrélation d'images en appliquant à l'échantillon de petits déplacements d'amplitude connue selon trois axes perpendiculaires. D'abord, on enregistre une image initiale de référence. Par la suite, on enregistre des images après avoir déplacé la caméra selon les deux axes perpendiculaires X et Y grâce aux platines micrométriques, en respectant la distance focale selon Z, ce qui se traduit par un mouvement global de la surface imagée dans le plan d'observation, sans déformation (déplacement de corps rigide). Enfin, on enregistre une image après avoir déplacé la caméra uniquement selon Z, ce qui entraîne un grossissement (ou un rétrécissement) de la surface observée, équivalent à une déformation apparente isotrope dans le plan d'observation.

Dans le cas de nos essais optiques, nous avons pu obtenir un minimum d'erreur sur la mesure de déplacement sub-pixel à l'aide du déplacement selon l'axe X de la platine de 500 µm pour une ouverture de diaphragme de 2 (influe sur la profondeur de champ) et un temps de pause (shutter) de 8000 µs. Ces résultats sont obtenus sur une grille de 80 x 80 points de mesure et des domaines de corrélation jointifs de 30 x 30 pixels. Les écarts-type obtenus sont présentés dans le Tableau 9. L'écart-type observé de l'erreur en déplacement (0.018 pixels selon x) induit une erreur de 0,02% pour la composante xx du gradient, pour une base de mesure de 60 pixels avec le schema d'intégration 2 (pas de grille de 30 pixels). Ce résultat donne une précision meilleure que les résultat de Dautriat *et al.*, 2011b, dont l'évaluation d'erreur avait

donné 0,09% dans la même direction mais sur une caméra CCD plus ancienne et pour d'autres conditions d'imagerie.

Tableau 9 : évaluation de l'erreur sur la mesure de déplacement après un mouvement selon l'axe X de 10 10 µm liée à la CIN pour des domaines de corrélation de 30 pixels.

Analyse en translation pure	Translation en X
Ecart type (ux,uy)	*(0,018 ; 0,021)*
Ecart maximum	*(0,37 ; 1,06)*

La seconde opération (déplacement en Z) permet la quantification plus complète des erreurs aléatoires et systématiques. La conséquence de ces erreurs systématiques lors du traitement par CIN est la présence d'artéfacts comme les bandes de Moiré (Dautriat *et al*., 2011b). Ce type d'erreur systématique peut être minimisé en jouant sur l'ouverture de diaphragme et l'algorithme d'interpolation des images (Yang *et al.*, 2010). Aussi, avant chaque acquisition d'essais optiques, nous réalisons une série de mouvements de camera en appliquant systématiquement un recul de 0,1 mm à la camera, jusqu'à 0,5 mm de déplacement total. On réalise cette opération pour chaque ouverture de diaphragme. La Figure 85 présente les résultats de ces estimations. On observe que l'erreur systématique n'excède pas 0,01 pixel et que l'erreur aléatoire est de l'ordre de 0,015 pixel. Ces valeurs d'erreur sont très satisfaisantes et prouvent l'efficacité du marquage de surface qui permet d'obtenir une distribution de niveaux de gris homogène sur l'ensemble de l'image et pas de contraste trop "dur" d'un pixel à l'autre. L'erreur induite par ces erreurs de la CIN sur le déplacement sur la déformation moyenne (zone de 80x30 pixels de côté) est de l'ordre de 0.01/ (80x30) / $80^{1/2}$ = 5.10^{-7}. Cette valeur très optimiste ne tient pas compte des autres erreurs, notamment géométriques, qui dominent alors l'erreur de corrélation. Ce sont les variations de grandissement et autres mouvement hors plan qui limitent la précision de la mesure globale.

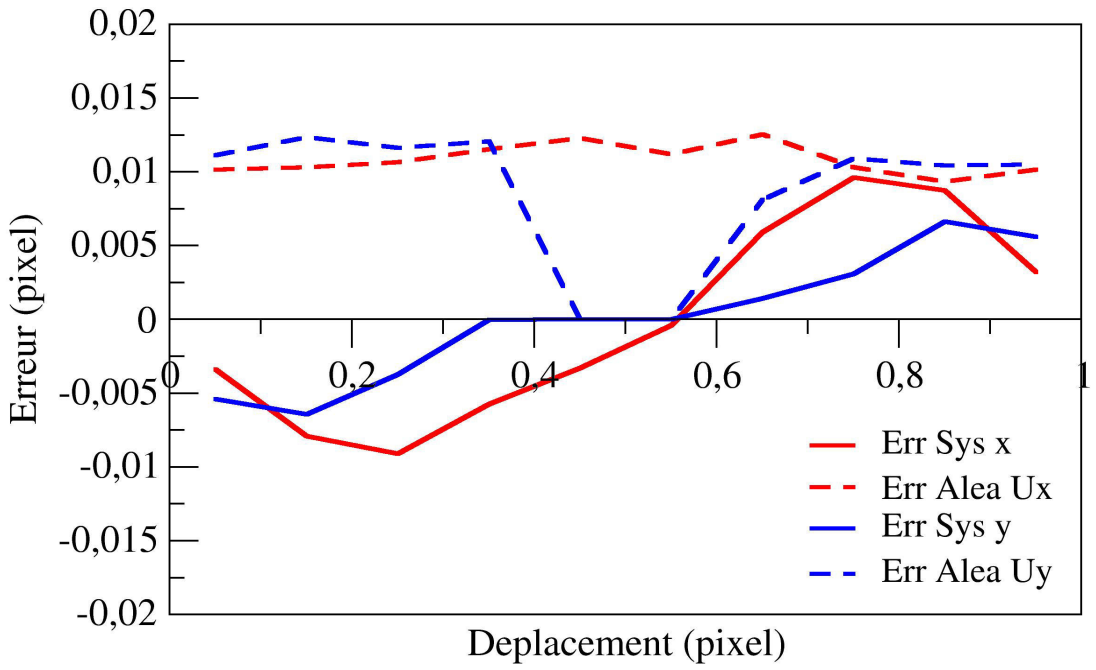


Figure 85 : courbe d'erreur systématique et aléatoire pour un recul de 500 µm de la platine, une grille de 80x80 et un domaine de corrélation de 30 x 30 et un diaphragme de 3. Caméra ImperX 16Mpixels grandissement 1, optique Schneider Kreuznach, avec mouchetis, champ de 24x36mm

IV.2-B) Exemples de cartographie

Dans cette partie nous décrirons des essais menés sur un échantillon sain, un échantillon altéré trois fois et un échantillon altéré six fois. Les résultats de ces essais ont été présentés dans le cadre d'une publication pour le congrès de l'American Rock Mechanics Association 2013. D'autres essais antérieurs avaient été présentés dans un article pour la Society of Core Analysts (SCA-2012). Ils ne sont répertoriés qu'en annexe, car ils avaient été menés sur des échantillons altérés issus du bloc LGG, ce qui fait que leurs résultats ne sont pas aisément comparables dans le détail avec ceux présentés dans ce chapitre. Nous n'en rappellerons ici que la résistance à la rupture dans la Figure 86.

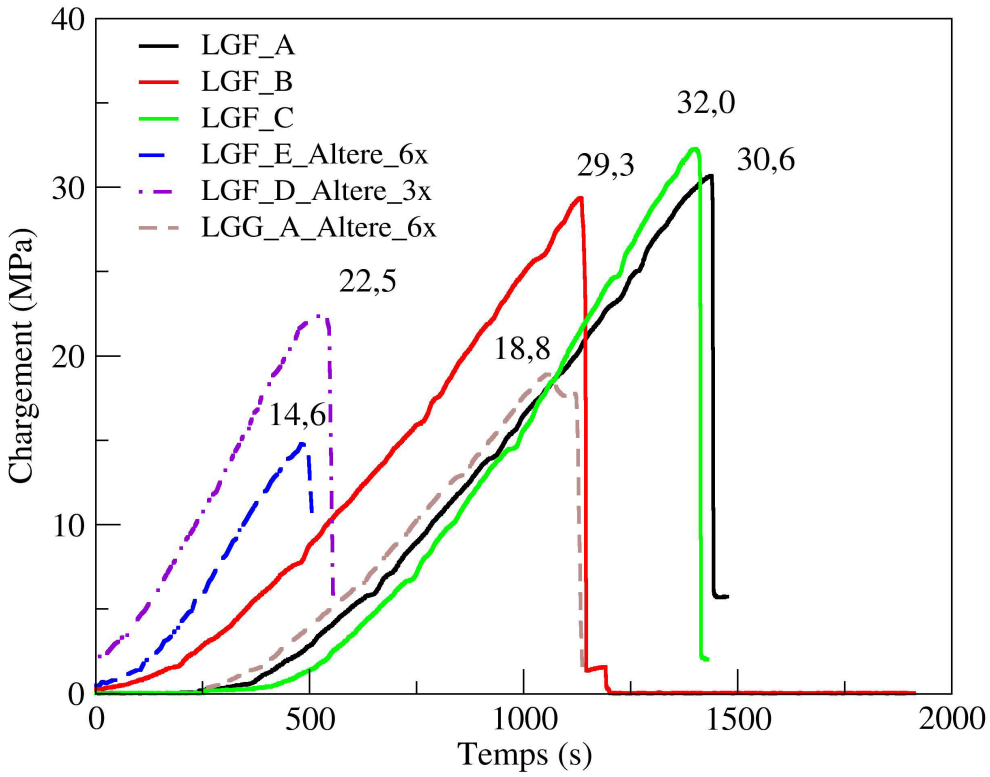


Figure 86 : courbes de chargement de 6 essais uniaxiaux couplés à de la CIN "macro" optique

Afin de donner une idée du comportement de notre roche sous chargement uniaxial, on présentera les cartes des composantes de déformations dans la direction de compression (ε_{11}), perpendiculairement à cette direction (ε_{22}) et la carte des déformations équivalentes au sens de von Mises (ε_{eq}) qui correspond au second invariant des déformations et quantifie la partie déviatorique de cette dernière, *i.e.* l'amplitude du cisaillement dans le plan d'observation. Ces cartes seront données pour trois états successifs de chargement, indiqués par des croix rouges sur les courbes de chargement présentées dans la Figure 87.

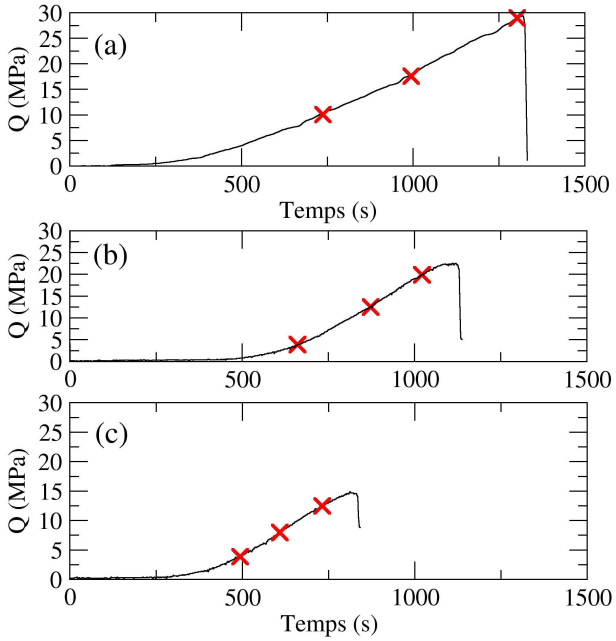


Figure 87 : Courbe de chargement pour les échantillons a) sain b) altéré 3x et c) altéré 6x, les croix rouges indiquent le chargement des cartographies présentées ci dessous

IV.2-B-a) Les échantillons sains

Les mesures de champs ont été menées sur trois échantillons de LGF soumis à un chargement mécanique uniaxial en déplacement contrôlé (1 µm/s). Elles montrent une bonne reproductibilité. Le niveau moyen de déformation avant la rupture pour une mesure faite sur l'ensemble de la surface observée est proche de ~0,2%. Les contraintes de rupture sont comprises entre 29 et 32 MPa. Trois de ces échantillons ont présenté une fracturation finale traversant la surface imagée, le quatrième a rompu sur un côté. Nous allons nous attacher à décrire pour l'échantillon LGF_B l'évolution des cartes de déformations et des courbes de déformations axiale et radiale moyennes, obtenues par corrélation d'images, ainsi que celle des modules élastiques associés. Cet échantillon a présenté un léger mouvement hors plan que nous avons tenté de corriger à l'aide de la mise au point automatique de la camera micro selon les principes exposés par Yang *et al.*, (2012). Les résultats de cette correction seront présentés dans la partie suivante en même temps que les courbes issues de la CIN et de l'évaluation des modules mécaniques. Nous avons choisi pour les cartes de déformation de nos échantillons que les déformations en contraction et en extension sont considérées négatives et positives, respectivement (convention usuelle de la mécanique des structures).

- La carte de déformation dans la direction de compression (ε_{11}) dans la Figure 89 nous montre à 10,1 MPa des valeurs comprises entre 0,04% et -0,02% de déformation. Les

valeurs positives de déformation se retrouvent dans les parties supérieures et inférieures de l'échantillon et peuvent s'expliquer par un effet de bord induit par la mise en place de l'échantillon dans les premiers instants de chargement. Cette mise en place provoque un léger déplacement hors plan vers la camera, et ainsi une extension isotrope apparente. La partie centrale de l'échantillon ne présente aucune localisation et la déformation moyenne est très faible (-0,02%) mais homogène correspondant au début de compression de l'échantillon dans le sens de chargement. Dans la direction perpendiculaire au sens de chargement (ε_{22}), on n'observe pas les effets de bord au contact des pistons, mais l'on voit clairement trois bandes de Moiré qui zèbrent l'image. La déformation moyenne sur l'ensemble de l'image est de 0,03%, qui peut être partiellement due au léger mouvement hors plan lors de la mise en place, et l'on peut dire qu'il n'y a pas de déformation localisée dans cette direction à ce niveau de chargement. Ces observations sont en adéquation avec la courbe de chargement puisque l'on n'observe pas de rupture de pente dans la phase élastique de chargement. Une schématisation de la localisation des bandes de Moiré est visible dans la Figure 88.

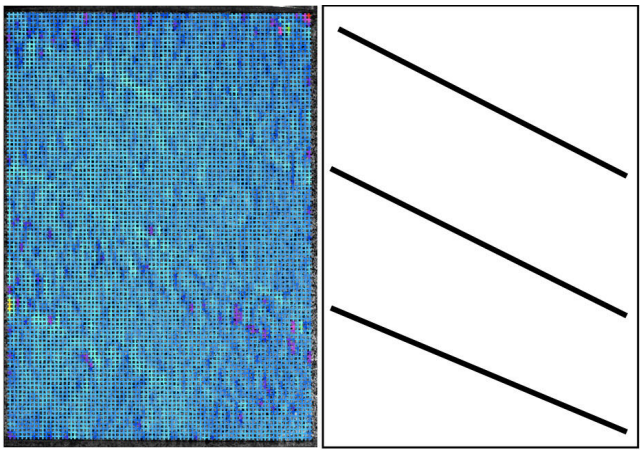


Figure 88 : carte en ε_{22} à 10,1 MPa de chargement et son schéma théorique permettant de localiser les bandes de Moiré

- A 17,6 MPa de chargement, la déformation centrale sur la carte ε_{11} devient plus importante. Par ailleurs, la valeur moyenne de déformation dans la zone centrale atteint -0,12% avec un point de localisation visible à droite de l'image en jaune (-0,24%). Deux autres points de petite taille sont visibles au centre de l'image avec des teintes tendant vers le vert (-0,18%). L'observation de la carte de déformation ε_{22} confirme que la déformation moyenne de l'échantillon devient suffisamment

importante pour que le rapport signal sur bruit soit en faveur du signal. En effet, il n'y a plus de bandes de Moiré visibles sur les images, les trois points précédemment cités sont mieux visibles dans cette direction de déformation, montrant que localement la composante de déformation perpendiculaire au chargement est plus marquée que la compression à ce niveau là de chargement. Les trois points sont de couleur jaune (0,15%) et entre ces points on retrouve un réseau de bandes de déformations plus importantes de couleur verte (0,1%). On a donc à ce moment du chargement un comportement d'initiation d'ouverture de fractures perpendiculairement à la direction de chargement. Cependant, ces initiations ne sont pas des endommagements macroscopiques car on ne remarque aucune rupture de pente dans la courbe de chargement. Visuellement en observant la surface à ces points d'intérêt rien de clair n’est identifiable.

- Enfin, à 29 MPa de chargement, sur une des dernières images avant la rupture finale de l'échantillon, nous voyons dans la direction ε_{11} que les trois points apparus à 17,6 MPa sont maintenant bien visibles avec une valeur de déformation locale supérieure à -0,4%. Autour de ces trois points se trouvent des zones de localisation avec des valeurs allant de -0,16% à -0,28%. La déformation moyenne de l'échantillon dans cette direction est de ~0,2%. Dans la direction ε_{22} les trois points précédemment cités sont reliés par bandes de déformations de déformation locale supérieure à 0,2%. Ces bandes qui relient les points montrent que la rupture se fait par une ouverture de fractures. Cependant, ces initiations visibles en DIC ne sont pas à l’origine des fractures à la rupture. On donnera dans l'annexe 3 une autre planche issue d'un échantillon sain de LGF_A

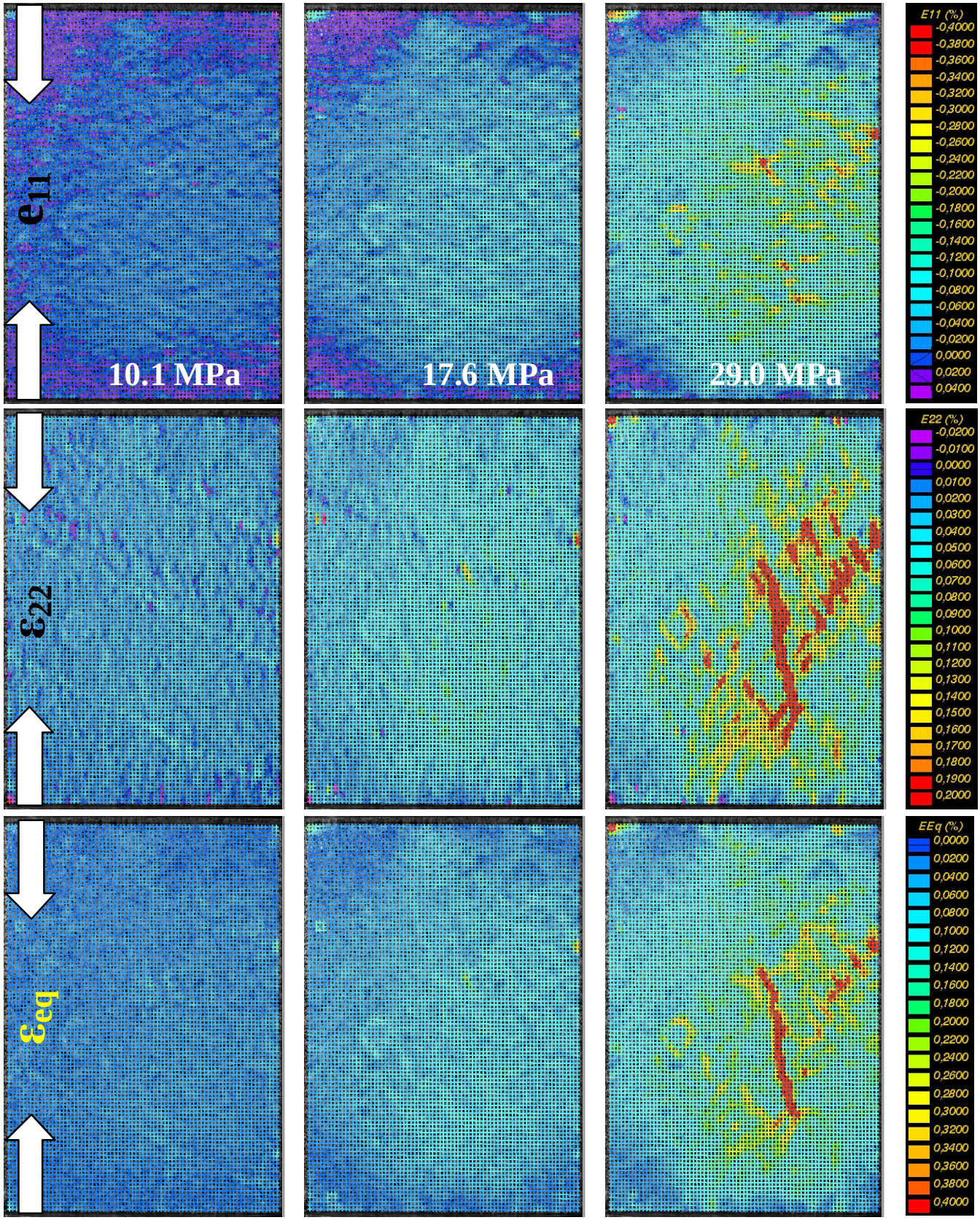


Figure 89 : cartes des déformations selon ε_{11}, ε_{22} et la déformation équivalente ε_{eq} pour l'échantillon sain LGF_B aux étapes de chargement 10,1, 17,6 et 29,0 MPa (cf Figure 87). Taille de l'image = 2813 x 4583 pixels, taille de grille de 100x75 points. Domaine de corrélation = 50 x50 pxls. Base de mesure = 106 pixels =742 µm.

IV.2-B-b) L'échantillon altéré trois fois

Nous allons dans cette section nous intéresser à la cartographie d'un échantillon de LGF altéré trois fois bien qu'un très fort mouvement hors plan se soit produit pendant l'essai. Il s'agit du seul échantillon dont nous disposions à cet état d'altération. L'échantillon a reculé par rapport à la camera provoquant une augmentation (en valeur absolue) des valeurs dans le sens de la compression verticale et une diminution de la valeur de déformation en ouverture dans la direction perpendiculaire au chargement. Aussi, les valeurs absolues annoncées dans cette description seront entachées d'erreurs mais le comportement qualitatif de la roche peut être discuté. Les cartes de déformations sont visibles dans la Figure 90.

- L'analyse des cartes ε_{11} et ε_{22} au premier palier de chargement à 3,9 MPa montre que le signal est principalement dominé par le bruit. On remarque par ailleurs que les effets de bord liés au contact avec les pistons dans les parties supérieure et inférieure ne sont pas visibles.
- A 12,5 MPa de chargement, la carte de déformation ε_{11} présente des zones de localisations en bandes perpendiculaires au sens de chargement. Ces bandes sont visibles en vert et se répartissent sur toute la hauteur de l'échantillon et correspondent à des compressions locales de -0,18%. Entre ces bandes, la déformation est faible (couleur bleu cyan) ce qui correspond à une valeur de -0,1% de compression. Le comportement de l'échantillon à trois cycles d'altération à ce niveau de chargement est donc plutôt compactant et localise plus rapidement que l'échantillon sain précédemment décrit. L'étude de la carte ε_{22} présente dans la partie supérieure droite de l'échantillon une localisation de déformation, mais l'ensemble de l'image présente une couleur très violette, correspondant à une compression dans la direction ε_{22} ce qui n'est pas attendu ici. Cet effet est induit par le mouvement hors plan de l'échantillon.
- Enfin, à 19,9 MPa de chargement, l'étude de la carte de déformation en ε_{11} montre le développement des bandes initialement observées à 12,5 MPa. Ces bandes présentent un code couleur jaune/orangé plaçant la valeur de déformation locale à -0,3%. L'étude de la carte des déformations ε_{22} présente une intensification de la localisation dans la zone supérieure droite qui semble marquer une écaille. Une nouvelle zone de localisation apparaît dans la partie supérieure gauche de l'échantillon. Ces localisations contrairement à l'échantillon sain ne sont pas des bandes en ouverture reliant des points de fragilisation. L'orientation des localisations n'est pas facile à définir, mais il semble qu'on ait un réseau de bandes de cisaillement conjuguées.

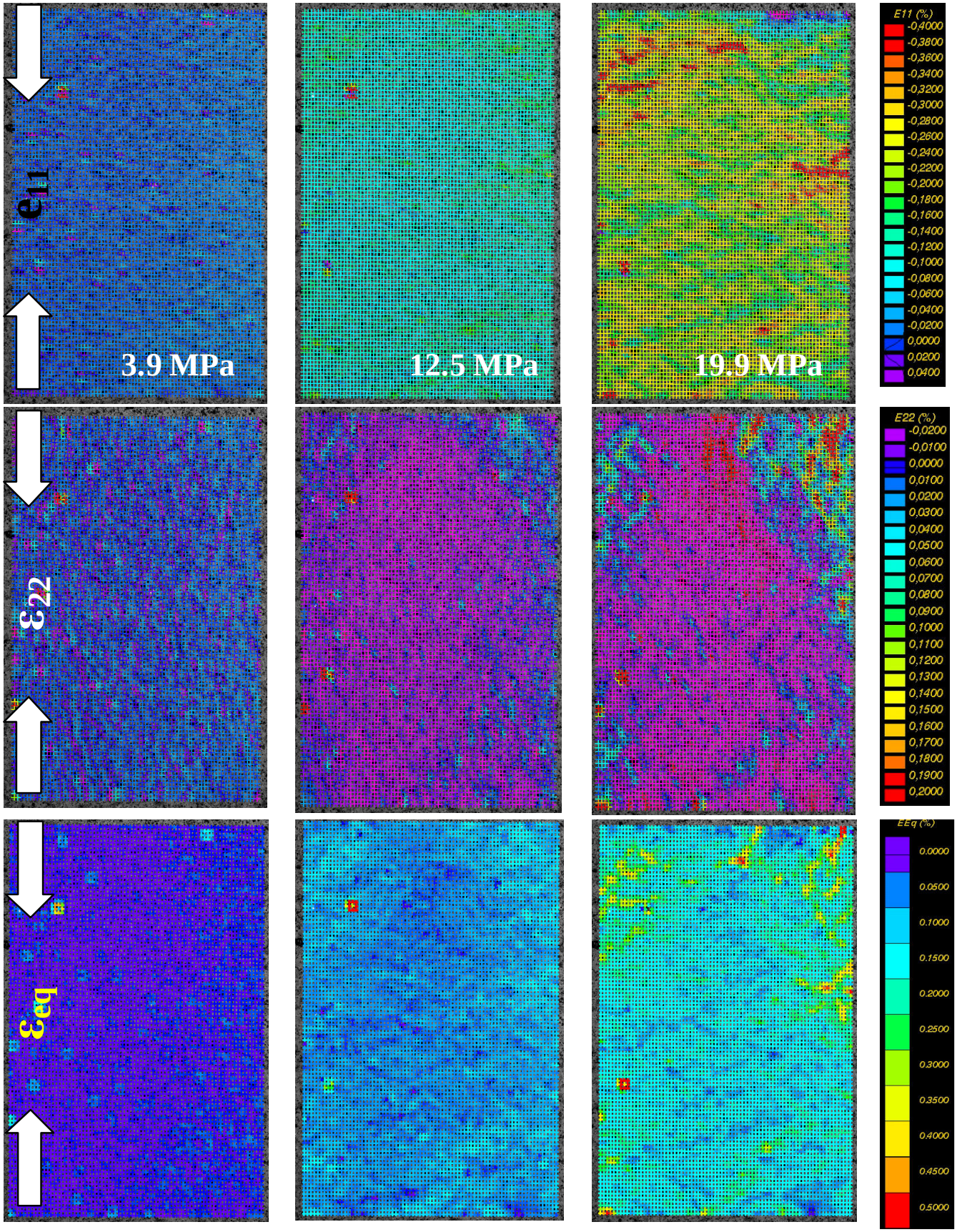


Figure 90 : cartes des déformations selon ε_{11}, ε_{22} et la déformation équivalente ε_{eq} pour un échantillon altéré trois fois LGF_Z50. Les cartes sont données à 3,9, 12,5 and 19,9 MPa (cf Figure 87). Taille de l'image = 2813 x 4583 pixels, taille de grille de 100x75 points. Domaine de corrélation = 50 x50 pxls. Base de mesure = 106 pixels =742 µm.

IV.2-B-c) Les échantillons altérés six fois

Les échantillons altérés six fois ont présenté de grandes difficultés d'usinage car la fabrication des méplats ou leur découpe peut facilement entraîner la ruine des échantillons. Nous avons cependant réussi à faire deux essais sur des échantillons de taille idéale (un pour le LGG et un pour le LGF) et un essai sur un échantillon de LGG mais de longueur trop faible pour pouvoir négliger les effets de forme. La rupture pour l'échantillon de LGG_A s'est produite à 18,8 MPa et pour l'échantillon LGF (LGF_E) à 14,6 MPa.

On remarque que tout comme pour les échantillons macroscopiques à faible confinement, bien que la valeur à la rupture diminue fortement comparativement aux valeurs obtenues sur les échantillons sains, la dispersion est forte pour les échantillons altérés six fois.

L'échantillon que nous allons décrire (LGF_E) a lui aussi subi un très fort mouvement hors plan lors de l'acquisition des images dans le même sens que pour l'échantillon précédent. Les effets décrits pour l'échantillon altéré trois fois LGF_D ne seront donc pas développés à nouveau. Les cartes de déformation sont visibles dans la Figure 92.

Tout comme pour l'échantillon altéré trois fois, les cartes des déformations en ε_{11} ne présentent pas d'effet de bords dans les zones de contact piston-roche.

- On remarque dès 4,0 MPa de chargement dans la partie supérieure gauche de l'échantillon une zone de déformation très localisée (>-0,38%) et l'apparition de bandes de déformation dans la partie inférieure, visibles en vert à -0,18% de déformation de même forme que pour l'échantillon altéré trois fois. La carte de déformation ε_{22} montre une localisation dans la partie supérieure gauche et une localisation en une bande verticale sur la partie supérieure droite de l'échantillon. Le reste de la carte est plus uniforme. L'ensemble est fortement impacté par le mouvement hors plan, qui fait que les déformations dans la zone centrale sont négatives, et probablement sous-estimées dans les zones latérales.

- L'analyse de ces mêmes cartes à 8,0 MPa de chargement montre seulement un développement de ces localisations et l'apparition d'une bande d'ouverture en extension dans la partie supérieure et centrale de l'échantillon sur la carte en ε_{22} (zone rouge vif de déformation >0,2%). En analysant la microstructure à cet endroit, on

observe en fait un endommagement traduit par l'ouverture d'une fracture dans laquelle on observe du broyage de grains. Malgré cet endommagement et cette très forte déformation moyenne de l'échantillon, la rupture n'a pas encore eu lieu. Ce broyage s'observe dans la bande horizontale de compaction et est illustré dans la Figure 91.

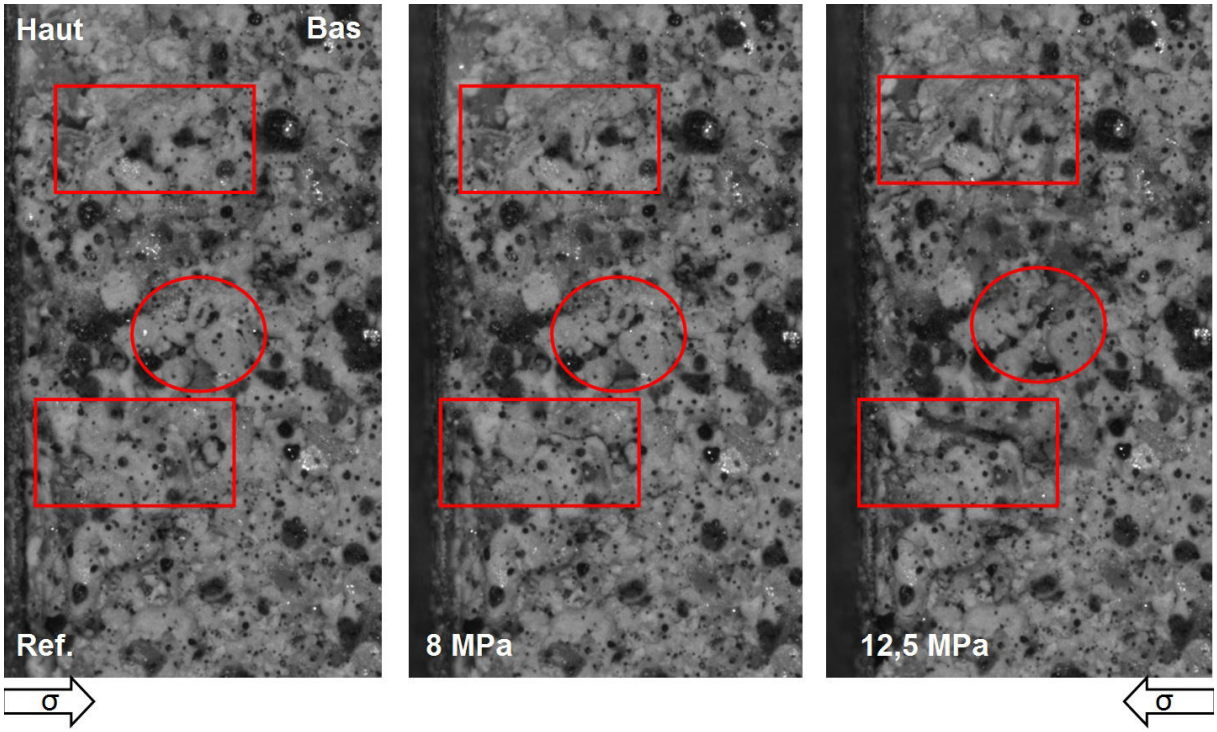


Figure 91 : détail microstructural dans la zone de compaction horizontale de l'échantillon altéré six fois, les carrés rouges indiquent de l'ouverture de fracture et le cercle rouge la zone de broyage

- A 12,5 MPa de chargement, la carte des déformations en ε_{11} montre la présence des bandes de localisation, plutôt horizontales, sur toute la surface observée et le développement de la zone de localisation initiale ce qui traduit une forte compressibilité de l'échantillon. La carte des déformations ε_{22} présente elle aussi simplement le développement des localisations observées dans les états de chargement précédents.

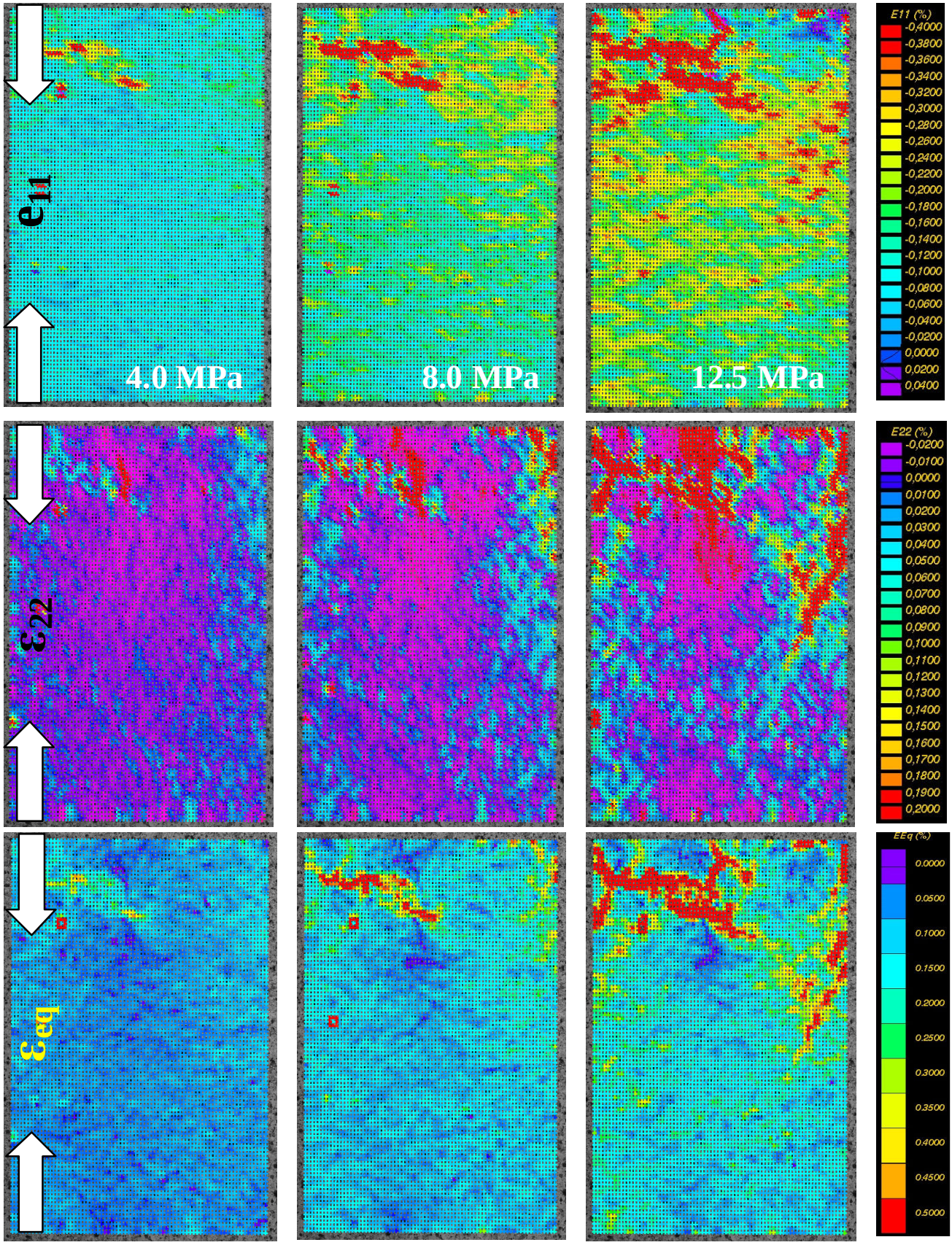


Figure 92 : cartes des déformations selon ε_{11}, ε_{22} et la déformation équivalente ε_{eq} pour un échantillon altéré six fois LGF_53. Les cartes sont données à 4,0, 8,0 and 12,5 MPa (cf Figure 87). Taille de l'image = 2813 x 4583 pixels, taille de grille de 100x75 points. Domaine de corrélation = 50 x50 pxls. Base de mesure = 106 pixels =742 µm.

IV.2-B-d) Modes de rupture des trois types d’échantillons

L'observation des surfaces cartographiées à l'aide de la camera "macro" après la rupture permet de rendre compte du développement des fractures et de comparer ces ruptures aux éventuelles localisations que nous avons observées en CIN.

La Figure 93.a présente la rupture de l'échantillon sain. On observe que la fracture principale est passée par les zones de localisation. La fracture secondaire, à gauche de l'échantillon ne passe cependant pas par des localisations cartographiées avant la rupture. Les essais uniaxiaux couplés à de la CIN pour les échantillons sains ont toujours montré cette tendance : si on observe des précurseurs de localisation par CIN, ils seront suivis par des fractures macroscopiques. En revanche, l’absence de ces précurseurs ne présume pas de l’absence de fracturation finale. L'initiation et le développement de la fracture finale peuvent en effet survenir sous la surface observée et se développer jusqu'à celle ci.

La forme des fractures après la rupture de l'échantillon altéré trois fois est présentée dans la Figure 93.b. On observe que la zone supérieure droite, où l'on a observé une zone d'ouverture, a donné naissance à une des fractures finales. La fracture de gauche n'a cependant pas été initiée sur la surface cartographiée.

La surface de l'échantillon altéré six fois est présentée sur la Figure 93.c. On y observe une fracture dans la partie supérieure droite de l'échantillon correspondant aux localisations observées sur la cartographie en CIN. Les déformations initiées dans la partie supérieure gauche de l'échantillon ne sont pas visibles sur cette image à l'état final de l'échantillon. La surface observée de la roche s'est écaillée.

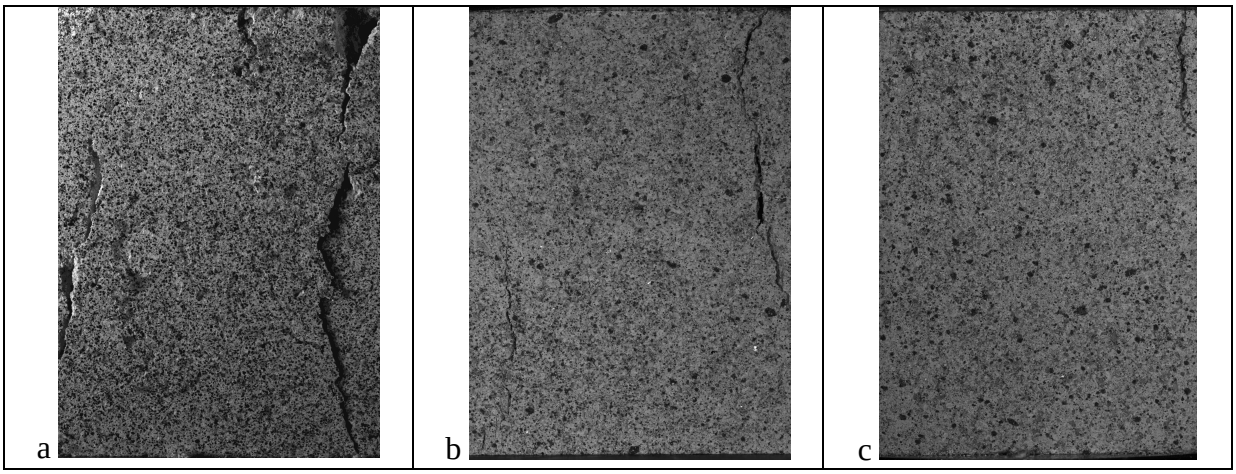


Figure 93 : image de la surface "macro" pour a) l'échantillon sain, b) l'échantillon altéré 3x et c) l'échantillon altéré 6x

IV.2-B-e) Discussion sur ces observations

Ces trois échantillons montrent que le niveau d'altération de notre matériau entraîne une diminution du seuil de rupture en conditions de chargement uniaxial. La corrélation d'images à l'échelle macroscopique met en évidence une évolution du mode de déformation des échantillons avec l'altération.

Les échantillons sains ont tous montré des niveaux de déformations globales très faibles et peu ou pas de localisation avant la rupture. Cette dernière est soudaine et se caractérise systématiquement par l'ouverture d'une fracture principale à l'échelle de l'éprouvette, mais dont la localisation n'est pas prévisible d'après les cartes CIN. L'échantillon altéré trois fois présente des similitudes et des différences, avec une longue phase initiale pendant laquelle la déformation reste faible, mais aussi avec des localisations qui apparaissent avant la rupture. Dès lors que ces localisations apparaissent, le reste de l'échantillon ne semble plus subir de déformation. La fracture finale se situe dans la zone de localisations de la carte CIN de la composante ε_{22}.Les échantillons altérés six fois issus du LGG ou du LGF présentent des comportements macroscopiques comparables à ceux des échantillons altérés trois fois. Nous avons observé à leur surface des localisations très précoces de déformation, qui se développent au cours du chargement jusqu'à la rupture.

En résumé, les différences de comportement observées à cette échelle tiennent essentiellement aux localisations plus ou moins précoces avant rupture. Afin de mieux analyser et comprendre les trois types de comportement une observation à une échelle plus fine est nécessaire, afin de fournir un point de vue microstructural, c'est dire de mettre en perspective les localisations par rapport à la microstructure. Ce travail sera réalisé dans la partie V.

IV.2-C)Discussion des courbes et des modules obtenus par CIN

Au-delà des cartographies des déformations, qui nous donnent une vision des localisations sur les surfaces d'observation, la CIN permet aussi de recalculer les déformations moyennes globales, en considérant la grille des domaines de corrélation comme une jauge virtuelle de déformation à l'échelle de l'éprouvette. Par rapport à une méthode classique, basée sur l'utilisation de capteurs de déplacement, cette approche a pour intérêt particulier de s'affranchir de l'éventuelle mise en place de l'échantillon (et des pistons) en début de chargement, ainsi que de la souplesse de la machine, problèmes qui compliquent l'analyse des

courbes pour extraire les paramètres élastiques du matériau testé. Nous avons ainsi pu obtenir par calcul les courbes de déformations axiales et radiales de nos échantillons en fonction du chargement. Nous présentons ici les trois courbes correspondant aux trois exemples pris précédemment à travers les Figure 94, 95 et 96.

Nous avons par ailleurs compilé dans le Tableau 10 l'ensemble des valeurs de contrainte à la rupture et des modules d'Young issus de la CIN 2D de l'ensemble des échantillons que nous avons testés. Les contraintes de rupture sont cohérentes avec les contraintes déviatoriques issues des essais triaxiaux macroscopiques. Les modules d'Young issus de la CIN sont par contre bien plus hétérogènes que ceux obtenus par essais triaxiaux mais reste cohérents car ils montrent une tendance à la décroissance avec l'altération.

Tableau 10 : Présentation de l'ensemble des résultats des essais uniaxiaux de CIN-2D macroscopique

	Altération	Valeur à la rupture (MPa)	E (GPa)
LGF_A	-	*30,6*	33,2
LGF_B	-	*29,3*	24,5
LGF_C	-	*32,0*	N/D
LGF_D	*3x*	*22,5*	7,0
LGF_E	*6x*	*14,6*	4,7
LGG_A	*6x*	*18,8*	12,5
LGG_B	*6x*	*16,6*	N/D

IV.2-C-a) Courbe des déformations moyennes pour l'échantillon sain

La courbe visible dans la Figure 94 montre les évolutions des déformations axiale et radiale obtenues par CIN pour le matériau sain. Nous avons pu à partir de ces courbes évaluer le module d'Young et le coefficient de Poisson de l'échantillon à l'aide de la pente des deux courbes dans la phase linéaire du chargement. On a ainsi obtenu un module d'Young de 24,5 GPa, une valeur de contrainte à la rupture de 29,3 MPa et un coefficient de Poisson de 0,58. Les valeurs du module d'Young et de contrainte à la rupture sont cohérentes avec les essais macroscopiques menés sous presse à 6 MPa de confinement. En revanche, la valeur du coefficient de Poisson n'est pas cohérente. Cette valeur est expliquée par un léger mouvement de corps rigide de l'échantillon par rapport à la caméra. Dans ce cas-ci, un rapprochement de l'échantillon vers la camera entraîne une dilatation apparente, ce qui se traduit par une surestimation de la déformation radiale et une sous-estimation de la déformation axiale, mais avec un impact relatif moins important pour cette dernière, car la déformation axiale est plus importante que la déformation radiale.

Nous avons tenté de corriger ce mouvement hors plan à l'aide de la mise au point automatique de la camera "micro". On évalue la distance capteur-échantillon par cette mise au point et on obtient la variation de grandissement. Après un calage entre le temps d'acquisition de la camera micro et celui de la camera macro on peut tracer la courbe de la position horizontale en Z de la camera par rapport à la surface de l'échantillon en fonction du temps de chargement axial. Cette courbe peut être ajustée par un polynôme du second degré, dont l'équation nous permet de déterminer la distance capteur-échantillon à tout moment du chargement. Nous pouvons ainsi obtenir en tout instant la variation de grandissement et donc la correction à apporter sur la déformation radiale et axiale. Cette correction a été tentée sur un échantillon altéré de LGG, imagé dans les mêmes conditions que l'essai présenté précédemment. Elle a permis de corriger modérément le coefficient de Poisson, dont la valeur passe de 0,41 à 0,35. La correction apportée sur le module d'Young est encore plus faible (12,5 GPa contre 12,0 GPa, après correction dans le cas du matériel altéré six fois), de ce fait nous avons décidé de ne pas l'appliquer de façon systématique.

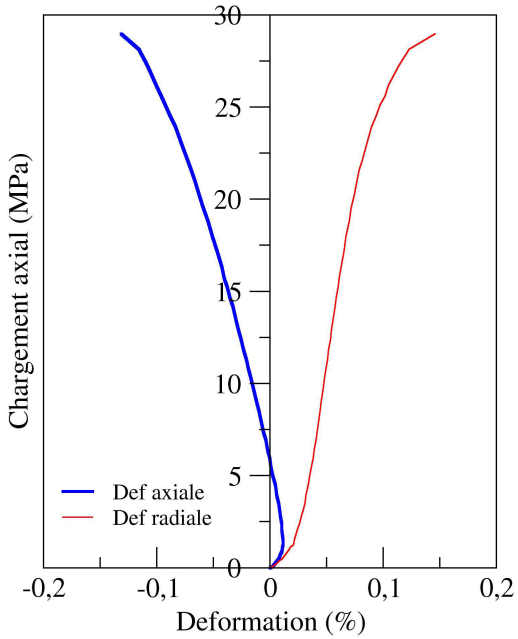


Figure 94 : courbe de déformations axiale et radiale en fonction du chargement axial obtenu par CIN pour l'échantillon sain de LGF

IV.2-C-b) Courbe des déformations moyennes pour l'échantillon altéré trois fois

La courbe correspondant à la cartographie présentée dans la partie précédente est donnée dans la Figure 95 pour l'échantillon altéré trois fois. La valeur de contrainte à la rupture est de 22,1

MPa. Le module d'Young déduit de cette courbe est de 7 GPa et le coefficient de Poisson est de 0,17. Ces deux paramètres sont clairement très fortement affectés par un mouvement hors plan, que nous n'avons pas pu corriger, car à ce moment le système de mise au point automatique de la camera "micro" n'était pas fonctionnel. Une méthode de correction est proposée à la suite de la description de l'essai mené sur l'échantillon altéré six fois. On remarque cependant que la courbe de la déformation axiale reste sensiblement linéaire jusqu'à la rupture, ce qui suggère qu'à cet état d'altération le comportement du matériau est essentiellement élastique, avant la rupture brutale. Cette indication est cependant à prendre avec précaution, au regard de la courbe de déformation radiale, qui montre une partie inélastique à partir d'environ 19 MPa de chargement. Cette déformation inélastique peut être expliquée par le développement de la localisation de la déformation observée dans la partie supérieure droite de l'échantillon.

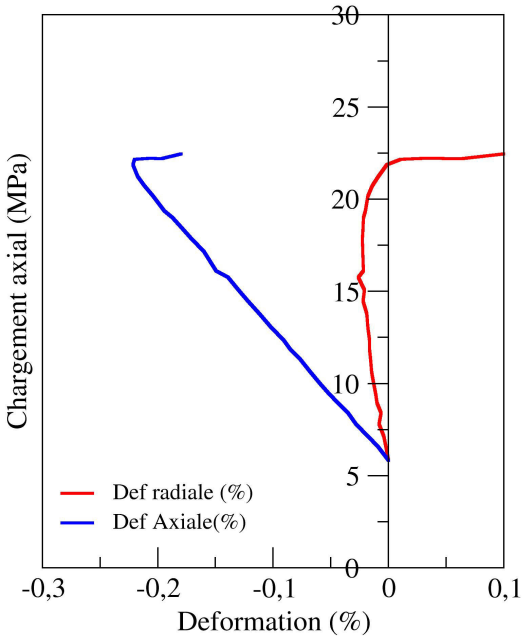


Figure 95 : courbe de déformations axiale et radiale en fonction du chargement axial obtenu par CIN pour l'échantillon altéré trois fois de LGF

IV.2-C-c) Courbe des déformations moyennes pour l'échantillon altéré six fois

Tout comme pour l'échantillon altéré trois fois, l'effet de mouvement hors plan a provoqué un adoucissement apparent du matériau (baisse des modules). On a ainsi calculé un module d'Young de 4,7 GPa et un coefficient de Poisson de 0,12. Pour corriger de ces effets une autre correction des valeurs de déformation que celle basée sur la mise au point automatique de la camera « micro peut être envisagée. Cette correction repose sur l'hypothèse que les

essais macroscopiques nous donnent la valeur du module d'Young de notre roche. On peut alors décomposer la déformation apparente ε_{app} comme la somme de la déformation induite par le mouvement hors plan ε_{CIN} et la déformation propre au matériau ε_{mat} ces déformations pouvant êtres reliées au module d'Young par la formule :

$$\varepsilon_{app} = \varepsilon_{CIN} + \varepsilon_{Mat}$$

En appliquant cette correction et en utilisant comme valeur de module d'Young du matériau 15,1 GPa (obtenue par les essais macroscopiques), on obtient un module d'Young de 6,4 GPa et un coefficient de Poisson de 0,16. Compte tenu de la faible valeur de contrainte à la rupture (14 MPa) de l'échantillon utilisé dans le cadre des essais couplé à de la CIN optique. On peut se demander si la valeur de correction extraite des modules effectifs issus des essais triaxiaux ne considère pas un matériau plus "rigide" que l'échantillon utilisé dans le cadre de la CIN.

A titre de comparaison, un essai mené sur un échantillon de LGG altéré six fois est présenté dans la Figure 96. Cet échantillon a rompu à 19,1 MPa, son module d'Young évalué par CIN est de 12,5 GPa et son coefficient de Poisson est de 0,41, valeurs ramenées respectivement à 12,0 et 0,35 à l'aide de la correction basée sur la mise au point de la camera « micro ». Les courbes de déformation de cet échantillon sont visibles sur la Figure 96.b (non corrigées).

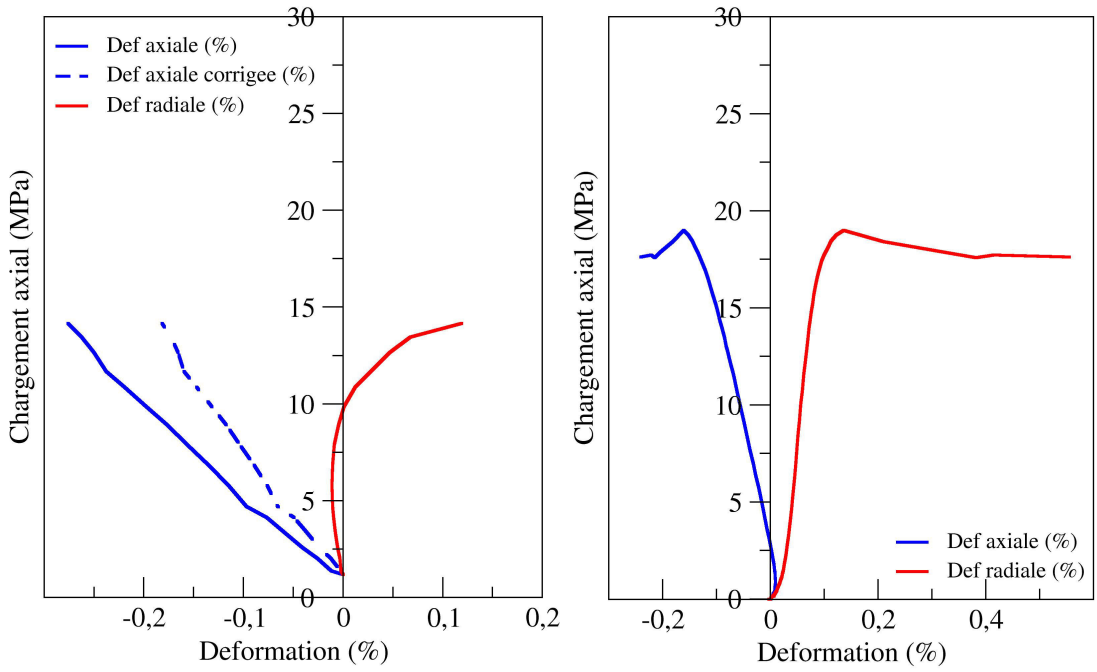


Figure 96 : courbe de déformations axiale et radiale en fonction du chargement axial obtenu par CIN pour l'échantillon altéré six fois a) de LGF et b) de LGG

IV.2-C-d) Conclusion sur les essais macroscopiques et les trois essais de CIN 2D optique

Les essais triaxiaux macroscopiques ont permis de mettre en évidence une transition du régime fragile vers un régime plus ductile de rupture associé à une diminution des valeurs de modules élastiques avec l'altération.

L'utilisation de la CIN-2D nous a permis de mettre en évidence les différentes façons qu'ont les échantillons à différents stades d'altération pour accommoder la déformation. Plus l'altération est forte, plus la déformation est localisée et conduit à la rupture finale par coalescence de fractures à travers l'ensemble des la zones de localisations. Les échantillons non altérés restent essentiellement élastiques tout au long du chargement et ne présentent que de rares localisations, lesquelles ne sont pas nécessairement liées à la fracture finale. Malgré les problèmes expérimentaux liés aux mouvements hors plan de nos échantillons, qui faussent l'estimation des valeurs des modules élastiques par CIN, la technique CIN montre, tout comme les essais sous presse triaxiale, une diminution relative des modules d'Young avec l'altération.

V Résultats de CIN-2D MEB et de CIN-3D issus de la mini presse triaxiale

Sommaire

V RESULTATS DE CIN-2D MEB ET DE CIN-3D ISSUS DE LA MINI PRESSE TRIAXIALE.....173

V.1- APPLICATION DE LA MESURE DE CHAMPS AUX ECHELLES MICROSCOPIQUE EN 2D 175

V.1-A) L'apport du MEB..... 176

V.1-A-a) Précisions sur le fonctionnement du MEB 176

V.1-A-b) Source d'erreurs en corrélation 2D MEB 179

V.1-A-c) Méthodes d'estimation et de minimisation des erreurs 179

V.1-A-d) Marquage des surfaces d'observation 181

V.1-B) Cartographies issues du MEB..... 185

V.1-B-a) Matériau sain 185

V.1-B-b) Matériau altéré six fois 188

V.1-B-c) Conclusion 191

V.2- LA METHODE DE CORRELATION 3D 192

V.2-A) Précision sur l'acquisition d'images microtomographiques 192

V.2-A-a) Acquisition 192

V.2-A-b) Reconstruction 193

V.2-B) Méthodes d'estimation et de minimisation des erreurs 195

V.3- LES RESULTATS OBTENUS EN CIN-3D 198

V.3-A) Premier essai uniaxial..... 198

V.3-B) Les premiers essais à 5MPa de confinement 199

V.3-B-a) Cartographie de l'échantillon sain 200

V.3-B-b) Cartographie de l'échantillon altéré trois fois 203

V.3-B-c) Cartographie de l'échantillon altéré six fois 207

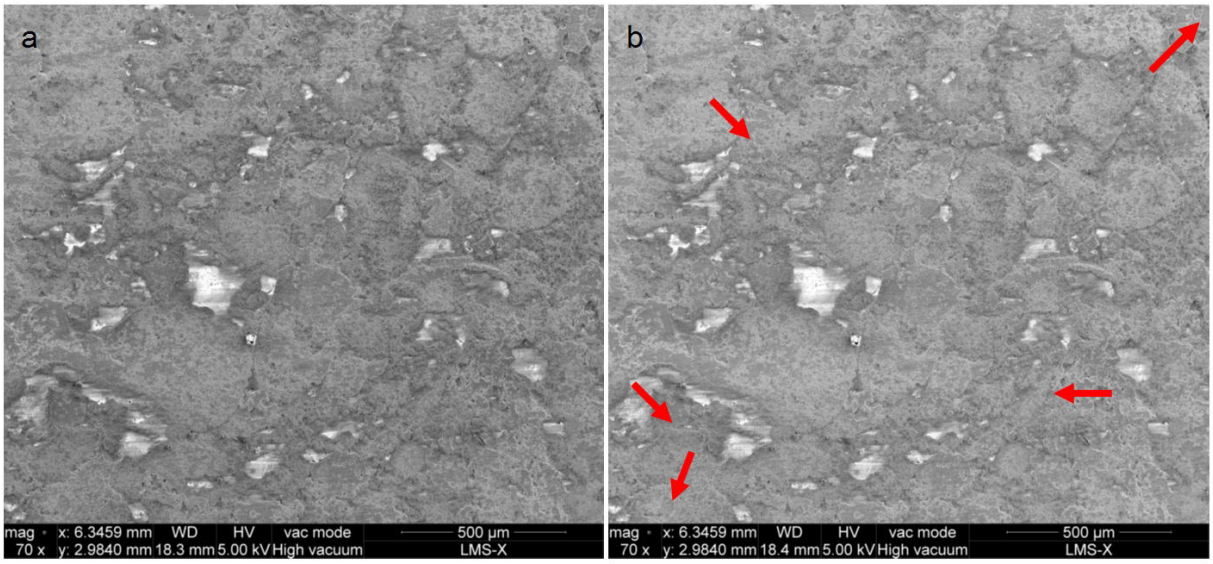
V.3-B-d) Conclusions sur ces trois essais 211

V.1-Application de la mesure de champs aux échelles microscopique en 2D

Dans le chapitre précèdent, nous avons été confrontés à certaines limitations de la corrélation d'images 2D macroscopique à fournir des informations précises quant aux paramètres microstructuraux intervenant dans les processus de rupture du chargement uniaxial. Le problème induit par le trop faible grossissement des échantillons avec le matériel optique utilisé est résolu par l'utilisation couplée d'une presse uniaxiale miniaturisée pouvant entrer dans l'enceinte d'un microscope électronique à balayage (MEB) et accéder ainsi à un grossissement plus important tout en conservant une très bonne résolution d'image. Les travaux utilisant la corrélation d'images au MEB ont été initiés lors la thèse de Bornert (1996) et repris par la suite dans les thèses de Doumalin (2000) et Héripré (2006) pour les matériaux métalliques et les estimations d'erreurs, de Dautriat (2009) et Yang *et al*., (2012) pour les carbonates et les argilites respectivement (présentant de faibles niveaux de déformation) et de Bourcier (2012) pour le sel, matériau plastique fortement déformable. Ces cinq thèses (parmi d'autres travaux) ont abouti à des développements particuliers pour l'application de la méthode à différentes classes de matériaux.

Dans cette section, nous apporterons des précisions sur le fonctionnement d'un MEB et nous présenterons les erreurs induites par cette technique d'imagerie. Nous montrerons par la suite, tout comme pour les acquisitions réalisées à partir d'outils optiques, les procédures d'évaluations des incertitudes sur le calcul des champs de déplacement et comment les minimiser lors de l'acquisition des images. Nous présenterons enfin des cartographies de déformation permettant de mieux détailler le comportement micromécanique de notre roche aux échelles du MEB.

Les essais à l'échelle du MEB que nous présenterons sont issus d'échantillons de LGG dont la structure plus grossière permet une meilleure visualisation et compréhension des micromécanismes. De plus, la campagne d'essais menée sur le LGF n'a pu être réalisée dans des conditions optimales, du fait de l'usure avancée du filament du canon à électron, avec pour conséquence une mauvaise répartition des contrastes pour pratiquer la CIN. De plus des déformations d'images étaient observées comme on le montre dans la Figure 97. Ces déformations sont localisées sur l'image et ne peuvent êtres corrigées.



WD	Mag	Contraste	Brillance	HV (kV)	Spot
18,3	70	53,2	35,3	5	4,5

WD	Mag	Contraste	Brillance	HV (kV)	Spot
18,4	70	53,2	37,5	5	4,5

Figure 97:a) image de référence au MEB à un grossissement de x70 b) image après un recul de 0,1 mm acquises dans les mêmes conditions, les flèches rouges indiquent les déformations locales observées

V.1-A)L'apport du MEB

V.1-A-a) Précisions sur le fonctionnement du MEB

Nous décrivons ici le fonctionnement du MEB que nous avons utilisé dans cette thèse, le Quanta 600 environnemental FEG (canon à émission par effet de champ) de FEI. Comme nous l'avons vu brièvement dans la partie II.2-B) le principe d'imagerie au MEB repose sur le bombardement par des électrons de la surface à observer. L'émission d'électrons est réalisée par un canon "à émission par effet de champ"; ces électrons sont ensuite accélérés par une tension réglable allant de 0,2 à 30 kV. Ce faisceau est ensuite focalisé et balaye la surface de l'échantillon. Lorsque les électrons atteignent la surface, une partie est absorbée par le matériau et une autre partie est dite réémise. Le contact électron-matière entraîne en effet plusieurs réactions comme la réémission de photon lors du retour à l'équilibre des électrons des couches de valence du matériau observé pour la cathodoluminescence. La méthode du MEB utilisée pour cette étude repose sur le principe de la réémission des électrons et de l'émission de nouveaux électrons par le matériau. Ces deux types d'électrons sont qualifiés d'électrons rétrodiffusés et d'électrons secondaires respectivement. On représente ces deux types d'émissions sur la Figure 98.

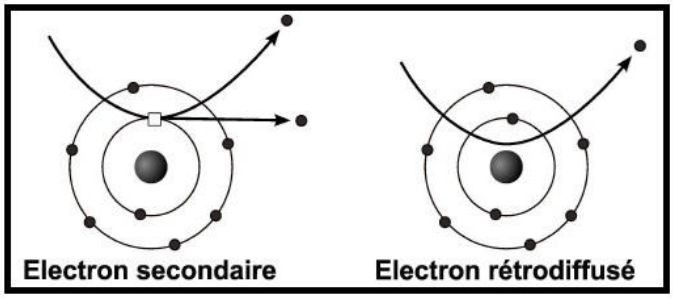


Figure 98 : schéma de principe d'émission des électrons secondaires et rétrodiffusés d'après Bourcier, 2012

Les électrons secondaires

Ces électrons sont émis par la surface au passage des électrons incidents, qui provoquent l'arrachage d'électrons de leur bande de conduction. Ces électrons sont émis à partir des couches les plus en surface de l'échantillon (<10 nm) et sont de faible énergie (~50 eV). Ceux sont ces électrons secondaires que l'on va chercher à capter via un capteur adéquat, en appliquant une différence de potentiel suffisante pour les attirer. La quantité d'électrons récupérés par le détecteur est grande et permet un meilleur rapport signal sur bruit de ces images, soit une meilleure qualité. Comme ces électrons proviennent de la surface de l'échantillon et leur énergie varie peu en fonction du matériau traversé, l'image reconstruite rend compte de la topographique de la surface de l'échantillon car la quantité d'électrons arrachés est dépendante de la surface.

Les électrons rétrodiffusés

Ces électrons sont issus de l'interaction entre un électron du faisceau incident et un noyau d'un atome du matériau étudié. Lors de cette rencontre, l'atome va réémettre des électrons dans une quantité dépendante de la taille du noyau. Plus l'atome sera gros, plus la quantité d'électrons émise sera grande. L'énergie de ces électrons est importante (~30 KeV) et l'information donnée par ces électrons est un contraste de phase. Plus le numéro atomique est important, plus il apparaîtra avec une forte brillance à l'image car la quantité d'électrons reçue sera plus forte. La forte énergie de ces électrons nous permet d'accéder à une information plus en profondeur sous la surface de l'échantillon. Dans le cas du carbonate de Lavoux, la différence de phase est quasi inexistante car sa composition majoritaire en calcite (99%) est quasi mono minérale. En conséquence les électrons rétrodiffusés nous donneront principalement un bon contraste entre les zones poreuses et la roche.

Les différentes interactions entre un faisceau incident d'électrons et la matière sont souvent représentées à l'aide de l'image de la "poire d'émission" visible dans la Figure 99.

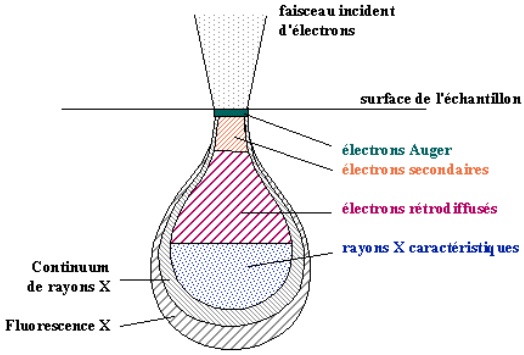


Figure 99: poire de diffusion issue d'un faisceau incident d'électrons

- Dans le cadre de notre étude, nous avons utilisé les électrons secondaires pour les acquisitions pour la corrélation d'images. En effet, la quantité d'information reçue par les capteurs est plus importante et les images sont moins bruitées. Cependant, la quantité d'électrons réémise est plus faible dans les zones de forte porosité et les larges pores sont peu résolus.
- Pour les images acquises à des fins d'observation microstructurales, nous avons utilisé les électrons rétrodiffusés qui nous donnent une meilleure visibilité dans les zones poreuses et une meilleure profondeur de champ.

Le bombardement d'électrons subi par la surface des échantillons provoque un phénomène d'accumulation de charge qui entraîne dans le cas d'une exposition longue une saturation de notre image (luminosité très forte). Ce phénomène ne s'observe pas dans le cas de matériaux naturellement conducteurs, comme les métaux, qui vont transmettre les excès de charge et les évacuer par le bâti du MEB relié à la masse. Dans le cas du calcaire de Lavoux, la calcite n'étant pas conductrice, il est nécessaire de métalliser la surface de l'échantillon pour permettre l'évacuation des électrons. A cette fin, nous déposons une couche de 2 nm d'or sur la surface à l'aide d'un métalliseur. Malgré cette précaution, la forte porosité de notre carbonate empêche la métallisation complète de la surface et les zones poreuses créent des accumulations de charge qui apparaîtront comme des zones à forte luminosité sur nos images. Afin de minimiser ces effets, nous avons utilisé des tensions d'accélération moyennes de l'ordre de 10 à 15 kV dans des conditions de vide fort (non environnementale à pression régulée).

V.1-A-b) Source d'erreurs en corrélation 2D MEB

Contrairement aux essais macroscopiques pour lesquels le système optique et le type de signal réceptionné (des photons) sont stables, le signal obtenu via le MEB est sujet à de multiples sources d'erreur intrinsèques à la méthode. D'après Doumalin (2000) on trouve comme source d'erreurs (voir aussi Wang *et al*., 2013) :

- le bruit de l'image, qui est potentiellement plus important sur des images MEB que des images optiques. Celui-ci est directement dépendant de la quantité d'électrons enregistrés à une position donnée. Pour minimiser ce bruit un balayage lent assurera une quantité d'électrons réémis par la surface plus grande. Cependant, plus le balayage est lent, plus les effets de charges sont importants ce qui nuit au contraste global de l'image, on chercha donc à trouver le bon équilibre entre le temps de balayage et la limitation des effets de charge.
- La dérive du faisceau au cours de l'acquisition de l'image. Cette dérive peut entraîner un décalage entre le haut et le bas de l'image. Cet effet est d'autant plus important que le grandissement est grand.
- Le balayage qui peut engendrer des déformations de pixels ou des sauts de lignes.
- Tout comme pour les images optiques, les variations de grandissements induites par un mouvement hors plan de l'échantillon ou de la partie observée de celui-ci.

A ces erreurs intrinsèques à la méthode s'ajoutent les erreurs systématiques précédemment décrites dans la partie II.4-B-c) .

V.1-A-c) Méthodes d'estimation et de minimisation des erreurs

La quantification des erreurs aléatoire et systématique pour le calcul du champ de déplacement dans le cas du MEB se fait par une méthode identique à la CIN optique. Nous avons donc réalisé des mouvements de corps rigide dans les conditions d'acquisition qui nous permettaient d'accéder à une bonne répartition des niveaux de gris sur l'image et ne créaient pas de contrastes locaux trop « durs ». Les trois réglages clés lors de l'acquisition des images pour minimiser les erreurs sont : la taille de spot, la tension d'émission et le temps de balayage pour chaque pixel. Les valeurs optimum que nous avons trouvé sont résumées dans le Tableau 11 :

Tableau 11 : conditions optimum d'acquisition au MEB

Taille de l'image	4095 x 3775
Tension	10 kV ou 15 kV
vitesse de balayage	30 µs
Taille de spot	4

Les courbes d'erreurs systématiques et aléatoires obtenues sont présentées dans la Figure 100 pour un domaine de corrélation de 50 x 50 pixels et une grille de 40 x 40 points. Les valeurs d'erreurs systématiques sur le calcul de déplacement sont faibles (maximum de 0,02 pixel d'erreur) mais sont cinq fois plus forte pour les erreurs aléatoires (maximum de 0,1 pixel d'erreur). Ces valeurs d'erreurs aléatoires sont comparables à celles obtenues par Dautriat (2009) sur le carbonate d'Estaillades mais les valeurs d'erreurs systématiques sont plus faibles dans notre cas, cette différence peut être expliquée par le meilleur contraste local de nos images induit par la microporosité de notre roche. Cependant, les échantillons au cours de nos essais in-situ dans l'enceinte du MEB ont présenté une tendance très forte au mouvement hors plan et à des effets de tilt rendant l'analyse des valeurs de déformations ardue. Aussi, nous n'exposerons les résultats obtenus que de façon qualitative pour les essais MEB et nous n'en tirerons pas de mesures de modules élastiques.

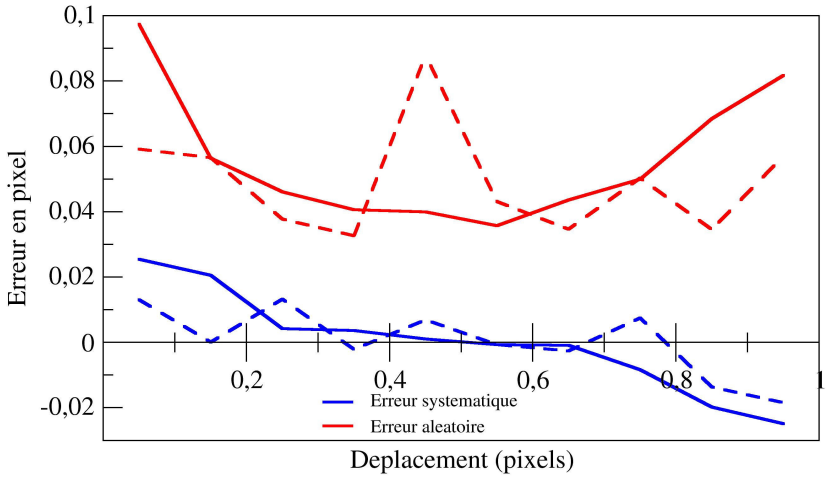


Figure 100 courbes d'erreurs systématiques et aléatoires obtenues sur un mouvement rigide au MEB pour 1600 points de grille: 40x40 domaine de corrélation : 50x50

V.1-A-d) Marquage des surfaces d'observation

Nous avons cherché à améliorer le marquage de surface de nos échantillons après les premiers essais qui montraient la difficulté de réaliser des corrélations d'images sur les surfaces trop polies.

- La première solution que nous avons essayée a été de réaliser un dépôt de billes d'or sur notre surface en suivant le protocole établi par Bourcier (2012). Le résultat obtenu est présenté dans la Figure 101. On observe un aspect plus "granuleux" de la surface du ciment qui permet de meilleurs contrastes locaux. Cependant, le protocole nécessite un recuit à une température de 450°C dans un four pour permettre la formation des billes d'or à partir d'un film déposé initialement à la surface. Ce processus entraîne de façon systématique la fissuration de notre roche, comme le montre le zoom encadré en rouge dans la Figure 101. Ce comportement de fracturation des grains calcaires a été observé par Yavouz *et al.*, (2010) à partir de 400°C dans le calcaire de Finike Lymra. A cette température, des clivages dans les cristaux de calcite apparaissent dans le travertin de Denizli, l'apparition de ces figures est donc cohérente avec le processus que nous avons appliqué à notre roche. Ces fractures n'existent pas à l'état naturel. Nous n'avons pas retenu cette méthode de marquage, car la présence de ces fractures perturbe l'analyse en CIN du comportement du matériau, qui montre la fermeture de ces fractures lors du chargement.

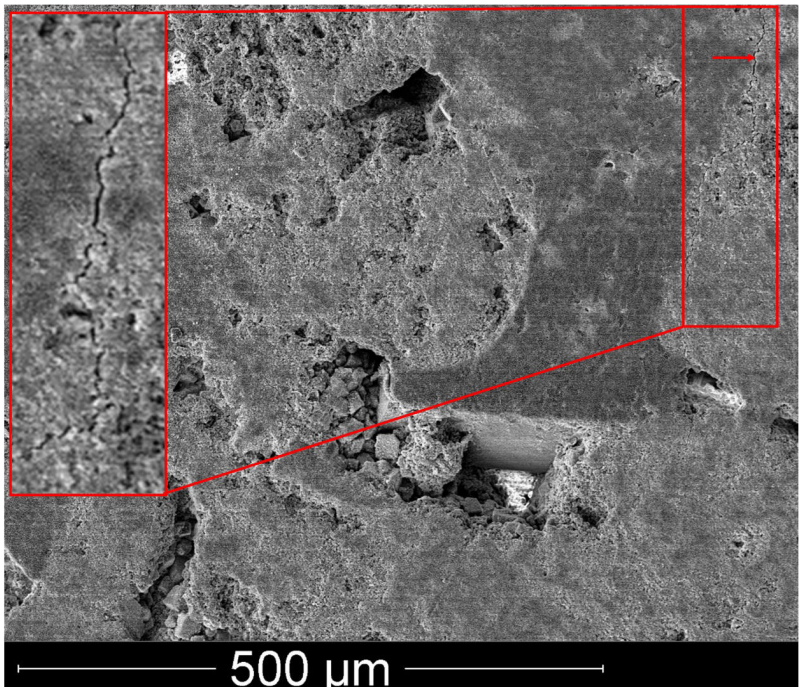


Figure 101 : image de la surface d'un ciment syntaxial avec billes d'or. L'encadré et la flèche rouge présentent les fractures induites par le protocole

Un exemple de fermeture de fracture thermique est présenté dans la Figure 102, où on montre une carte des déformations équivalentes pour l'échantillon LGG_MEB3, avec le détail microstructural associé. On observe par ailleurs la très petite taille des billes d'or (0,5 à 2 µm) ce qui en fait un marquage très fin pour la CIN et qui en pratique permettrait de minimiser les erreurs sur le calcul du champ de déplacement. On ne peut donc que regretter le fait que le recuit endommage le matériau. La rupture de l'échantillon LGG_MEB3 a eu lieu à 24.9 MPa ce qui est bien inférieur aux niveaux de rupture des échantillons sains n'ayant pas subi le dépôt de billes d'or (38 MPa en moyenne à la rupture).

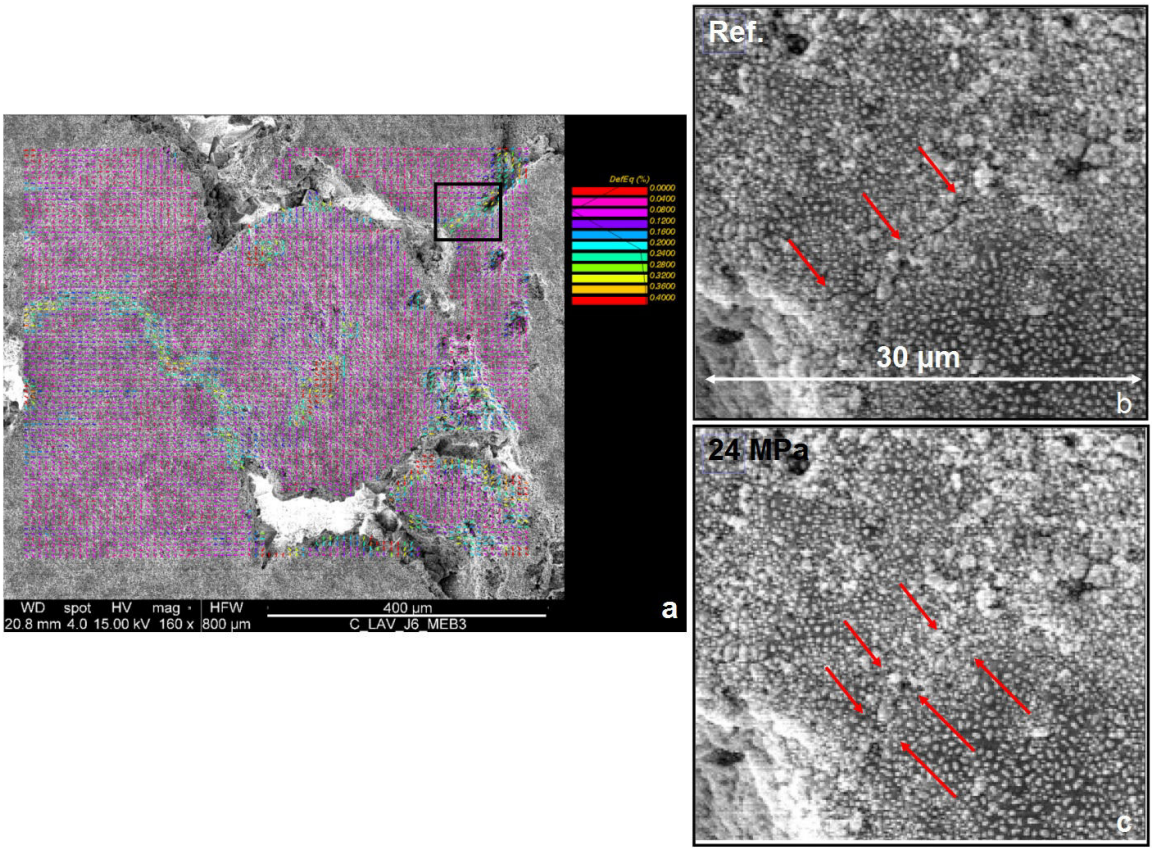


Figure 102: a) carte de déformation équivalent pour LGG_MEB3 entre l'image de référence et 24 MPa b) Détail du carré noir sur la carte de déformation d'une fracture à l'état initial c) Détail identique après 24 MPa de chargement

- Une seconde méthode de marquage a été testée, cette méthode consiste à déposer sur la surface observée des particules de toner d'imprimante (mélange de résine et de matière plastique) dont la calibration en usine est fine (particules de 5 µm de diamètre de moyenne). Une fois ce dépôt effectué, les particules sont fixées à la surface par une fine couche de quelques nanomètres d'or que l'on dépose à la surface pour permettre l'évacuation des électrons. Le résultat de ce dépôt est présenté sur la Figure 103.

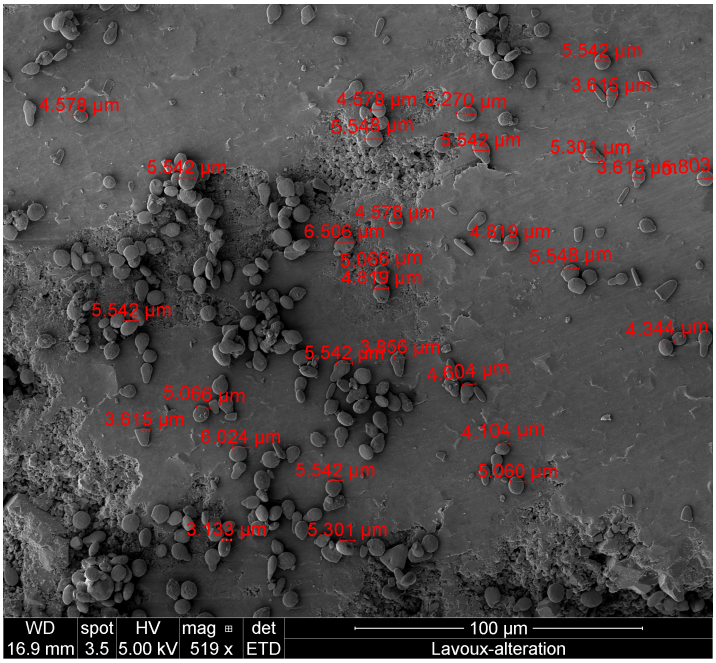


Figure 103 : Exemple de dépôt de tonner d'imprimante et décompte de la taille des grains

Bien que le résultat soit satisfaisant pour la couverture de la surface de l'échantillon, nous n'avons pas non plus conservé cette technique de marquage car ces particules de toner entraînent l'apparition d'ombrage lors du balayage de l'image par le MEB, rendant le contraste des images très mauvais ainsi qu'une distorsion de celle-ci à l'abord des particules. Cet effet n'était pas observé avec les billes d'or, certainement que la plus grande taille de ces particules leur confère une plus grande incidence sur le faisceau lors du balayage (effet topographique).

- La troisième méthode que nous avons appliquée à nos échantillons a été de ne pas marquer notre surface et de nous contenter du contraste naturel induit par la microporosité de notre roche. Cependant, afin de maximiser le plus possible les contrastes locaux, nous avons testé de nombreux niveaux de polissage des surfaces. Ce polissage ne pouvant être le même en fonction du niveau d'altération de nos échantillons. Plus l'échantillon est altéré plus on observe du bouchage de la microporosité. Après plusieurs essais de polissage, il est apparu que les meilleurs paramètres de polissage sont :

Altération	Taille du grain de polissage maximum	Taille des grains en µm
Sain	*4000*	*5 µm*
3x	*2400*	*10 µm*
6x	*1200*	*22 µm*

V.1-B)Cartographies issues du MEB

V.1-B-a) Matériau sain

Avant de commenter les cartes de déformation, nous allons présenter les courbes de chargement des échantillons testés. Nous avons imagé en moyenne 3 positions à faible grandissement (entre x40 et x80) nous donnant une vision sur une surface d'environ 1,5 mm par 1,5 mm par position. De plus nous avons acquis 3 détails microstructuraux à des grossissements allant de x120 à x180, nous donnant une surface observée d'environ 800 µm par 800 µm par détail. La durée totale de chaque essai dure entre 5 et 10h de temps d'acquisition, selon le nombre de paliers réalisés (généralement six à sept paliers). Les courbes présentées dans la Figure 104 ne correspondent pas aux échantillons ayant rompu de façon prématurée, du fait de défauts d'usinage (non parallélisme entre les deux faces d'appui), ou dont la microstructure présentait trop d'hétérogénéités. On remarque que l'échantillon sain LGG_MEB_6 présente un seuil de rupture plus bas que les autres échantillons sains et des relaxations plus importantes après chaque chargement, qui pourraient être liées à des hétérogénéités non observables en surface. Les essais menés dans l'enceinte du MEB et couplés à la CIN n'ont pas pu être réalisés sur un matériau altéré trois fois, les contrastes fournis par le MEB n'étaient pas suffisants et l'image trop déformée, car la colonne à électrons du MEB ne fournissait plus assez de faisceau lors de cette campagne d'essai.

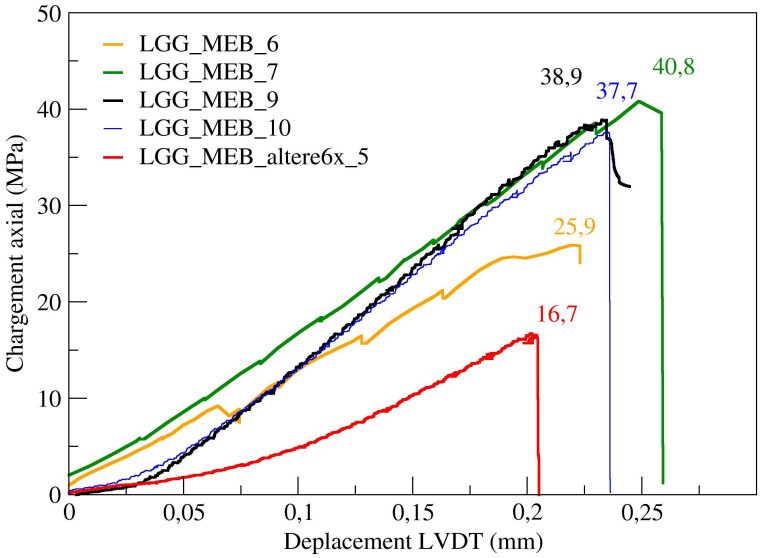


Figure 104:Chargement des différents échantillons chargés dans l'enceinte du MEB, 4 échantillons sains et 1 échantillon altéré six fois

La Figure 105 présente les deux microstructures des échantillons analysés par CIN par la suite. Les encadrements blancs représentent les zones d'intérêts traitées par corrélation d'images.

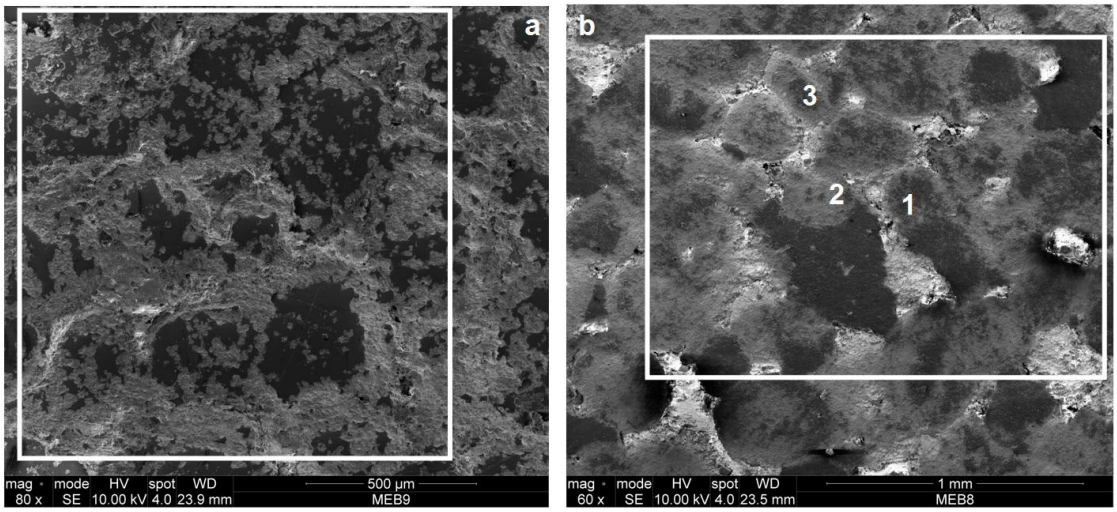


Figure 105: a) microstructure de l'échantillon sain LGG_MEB_9 b) microstructure de l'échantillon altéré six fois LGG_AMEB_5

Les cartes de déformation obtenues sur les échantillons sains montrent un comportement à la rupture similaire, avec les mêmes mécanismes de localisation de la déformation. Nous ne présentons ici qu'un exemple de carte des déformations équivalentes issues l'échantillon LGG_MEB_9, les cartes des composantes ε_{11} et ε_{22} n'apportant pas d'information supplémentaire. Les conditions d'acquisition des images sont rapportées dans le Tableau 12 pour un polissage de la surface d'observation à un grain de 5 µm.

Tableau 12: résumé des conditions d'acquisition pour l'échantillon LGG_MEB_9

Taille de l'image	4095 x 3775
Tension	10 kV
Grandissement	80x
nature des électrons	SE
Distance de travail	23,9
vitesse de balayage	30 µs

Les cartes obtenues lors du chargement sont dominées par de très faibles valeurs de déformations équivalentes (inférieures à 0,08%) et la présence de bandes de Moiré traduisant un déplacement mesuré d'une valeur entière de pixel. Ceci est illustré par la Figure 106, les zones les plus bruitées sont les zones (très noires) dans lesquelles le contraste est le plus

uniforme, elles correspondent aux zones les plus polies. Une bande de moiré est clairement illustrée Figure 106.c dans la partie inférieure de l'image, en jaune.

Les seules zones qui présentent de la localisation de la déformation sont des zones de macro porosité inter granulaire (à partir de 21 MPa) dans la Figure 106.c, en rouge dans la partie inférieure gauche et en jaune dans la partie supérieure droite de l'image. Cependant, ces zones étant très affectées par les effets de chargement électrostatique et les déformations de faisceau (dû à l'effet de "puits" de la porosité), il était nécessaire de s'assurer que les informations obtenues ne correspondent pas uniquement à des artefacts d'imagerie. En réalisant des zooms de ces zones et en alternant rapidement les visualisations entre l'image de référence et l'image déformée après calage, on a pu confirmer qu'il s'agit d'une fermeture de la porosité du fait de mouvements relatifs entre oolithes. Aucun autre type de localisation ne préfigure la fracturation du matériau sain.

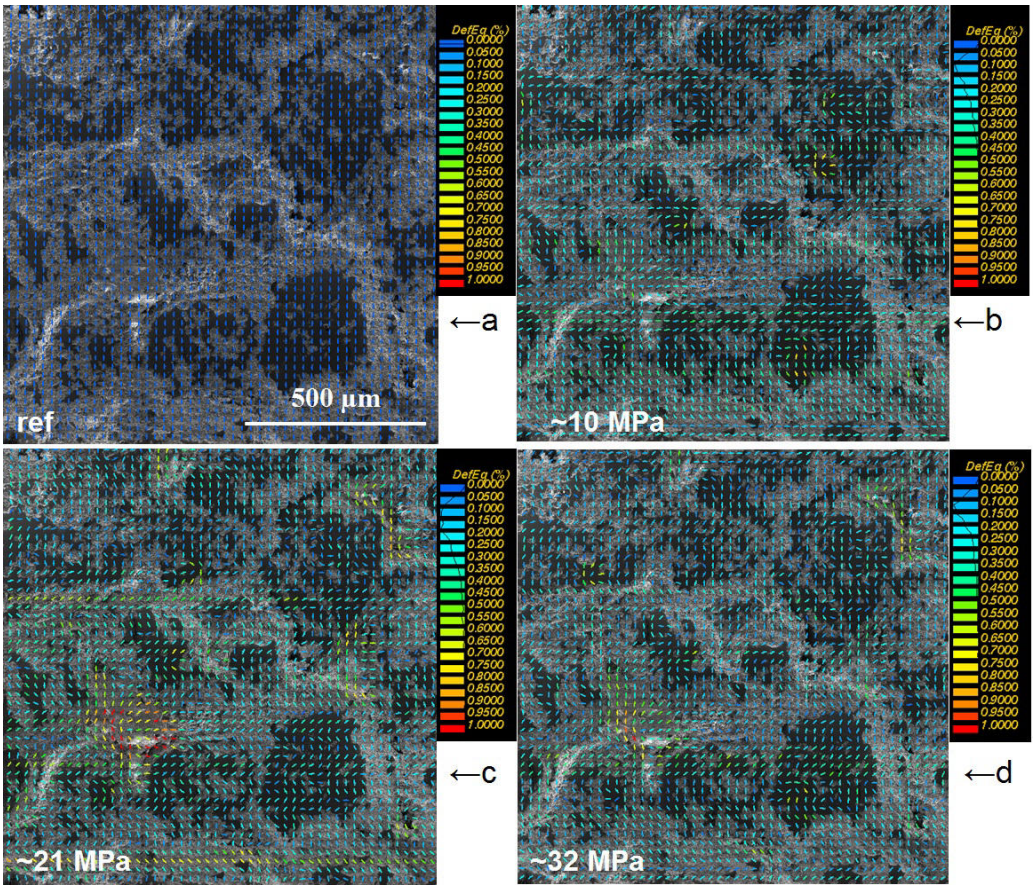


Figure 106:cartographie des déformations équivalentes pour un échantillon sain de LGG observé au MEB à différents niveaux de chargement

On retrouve pour le matériau sain un comportement fragile, traduit par une rupture soudaine en bande de cisaillement. Malheureusement, la bande n’a pas été initiée sur les surfaces

observées. L'initiation des bandes de cisaillement est imprévisible et celles-ci peuvent apparaître sur les faces latérales de l'échantillon. Le comportement est globalement identique à celui observé à l'aide de la CIN sur les macros échantillons. L'utilisation du MEB a cependant permis l'identification des mécanismes de mouvements relatifs des oolithes dans la macroporosité inter granulaire pour accommoder la déformation, entraînant une fermeture de la porosité.

V.1-B-b) Matériau altéré six fois

Les échantillons altérés six fois ont posé beaucoup de soucis lors de leur usinage. En effet, pour fabriquer les parallélépipèdes, nous ponçons d'abord trois faces à l'aide d'une table de polissage avec un gros grain de polissage afin d'obtenir quatre faces parallèles deux à deux. C'est durant cette étape qu'une grande partie des échantillons ont rompu prématurément. Les échantillons sont fixés sur chaque face à l'aide d'une cire de polissage à un plot permettant de réaliser des faces parallèles à la face fixée puis décollés. Ces étapes, même réalisées de façon très minutieuse ont abouti à la perte d'une importante quantité d'échantillons. Nous avons ainsi pu obtenir au final sept échantillons usinés pour le MEB. Parmi ces derniers, seuls deux n'ont pas montré de rupture prématurée lors des essais uniaxiaux : AMEB3 et AMEB5, AMEB3 a été peu exploitable à cause du marquage au toner d'imprimante. Nous allons donc présenter les résultats du seul échantillon exploitable AMEB5. La Figure 107 présente en a et b les cartes de déformations locales en ε_{11} à 8,8 et 12,6 MPa de chargement, en c et d les cartes de déformations locales en ε_{22} aux mêmes chargements. La rupture de l'échantillon AMEB5 a eu lieu à 15,8 MPa. Les conditions d'acquisition pour l'échantillon LGG_AMEB_5 sont données dans le Tableau 13, pour un polissage à un grain de 10 µm.

Tableau 13: résumé des conditions d'acquisition pour l'échantillon LGG_AMEB_5

Taille de l'image	4095 x 3775
Tension	10 kV
Grandissement	60x
nature des électrons	SE
Distance de travail	23,5
vitesse de balayage	30 µs

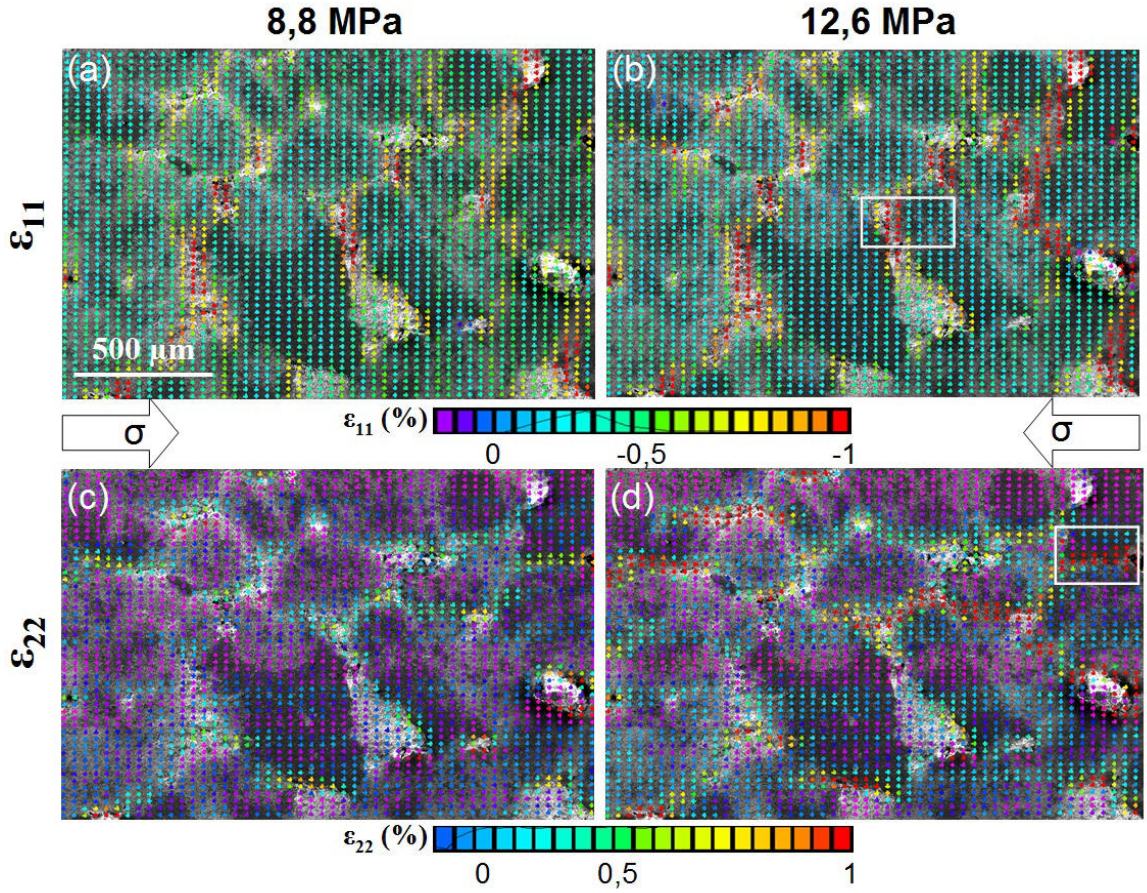


Figure 107: cartographie obtenue par CIN pour l'échantillon altéré 6x LGG_AMEB5 dans les directions de déformations ε_{11} et ε_{22}

On observe à partir du palier à 8,8 MPa des zones de localisation (~-0,6%) sur la carte en ε_{11}, ces localisations se trouvent de façon systématique dans les surfaces entre oolithes, dont l'orientation est perpendiculaire à l'axe de chargement. Il n'y a pas apparition de nouvelles zones de localisation à 12,6 MPa, mais une intensification de la déformation dans les zones précédemment décrites (>-1%). Ces zones montrent localement le maximum de la composante compressive. En analysant la microstructure (encadré blanc dans la Figure 107.b), que l'on retrouve en zoom dans la Figure 109, on remarque des mouvements entre les oolithes. On observe des micros fracturations qui semblent être couplées à des chevauchements de l'oolithe en bas à droite de l'image (Figure 105.b.1) sur celle au centre (Figure 105.b.2). Des fractures intragranulaires sont par ailleurs observées sur les bords de cette zone compressive. L'oolithe numérotée 3 dans la Figure 105.b présente une légère rotation, induite par le mouvement compressif appliqué par sa voisine de droite.

L'analyse des cartes en ε_{22} montre des localisations qui ne se superposent pas à celles observées en ε_{11}. Ces localisations apparaissent dès 8,8 MPa de chargement dans des zones de

contact ciment-oolithes ou oolithe-oolithe, mais dont l'orientation est parallèle à l'axe de chargement. Ces déformations sont d'environ 0,5% à 8,8 MPa et >1% à 12,6 MPa. Les zones dont la couleur est violette correspondent soit à des zones sans déformation, soit à des zones où le bruit domine le signal. Lorsque l'on observe la microstructure située dans l'encadré blanc de la Figure 107.d on assiste au développement d'une fracture en ouverture à l'interface entre les grains, comparable aux fractures associées à la zone de compression dans les cartes en ε_{11}.

Ces détails microstructuraux sont visibles dans la Figure 109. Les événements présentés en e et f sont difficiles à observer de façon statique sur une image car ils apparaissent dans une zone microporeuse constituée de micrite. Les flèches rouges représentent le mouvement de chevauchement de la partie droite sur la partie gauche de l'image.

Ces événements de microfracturation et de mouvements relatifs ont été mis en évidence dans seulement deux positions d'observation sur six. Ces événements sont donc très localisés et il n'est pas possible de généraliser ces mécanismes à l'ensemble de l'échantillon. Cependant, si on regarde la Figure 108 où sont positionnées schématiquement les zones d'études, on remarque que celles présentant de la localisation précoce (en rouge) sont proches l'une de l'autre. Ceci suggère une zone de localisation plus étendue dans la partie centrale de l'échantillon. Ce type de localisation mésoscopique avait été observé dans les essais macroscopiques CIN-2D au même état d'altération.

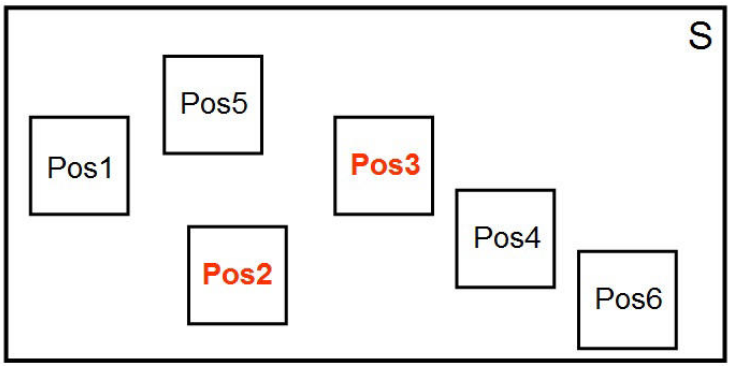


Figure 108: localisation des 6 positions étudiées pour LGG_AMEB5, les noms en rouges sont les positions présentant de la déformation localisée et précoce

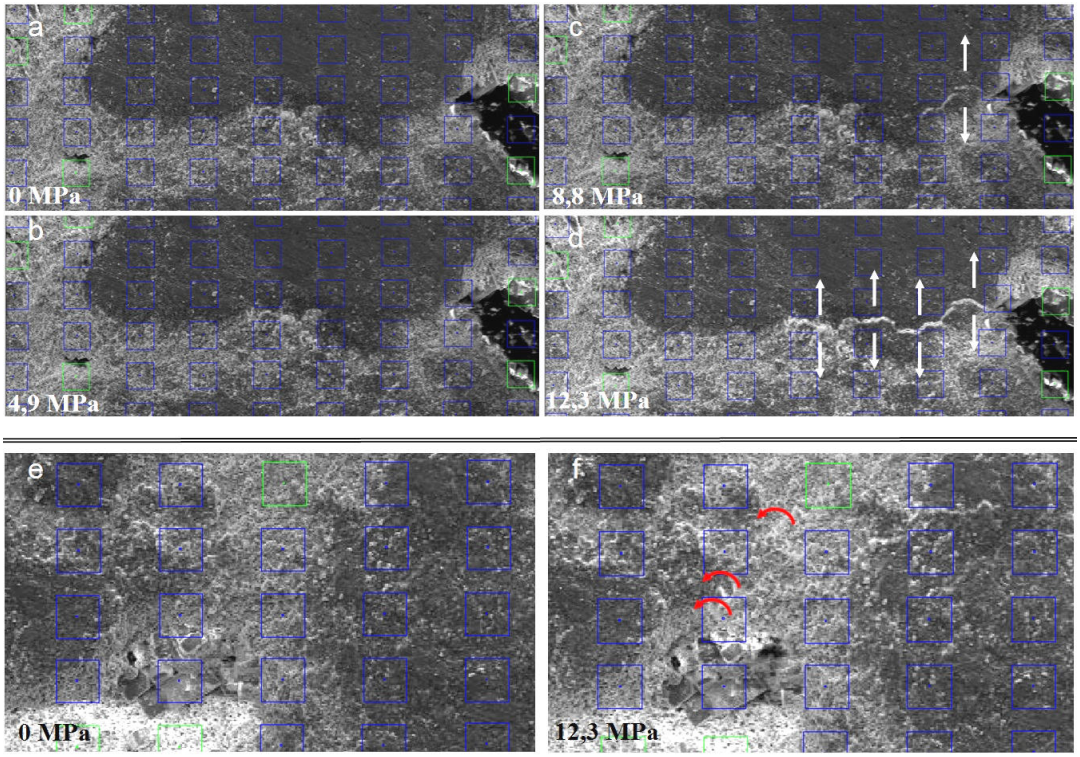


Figure 109: détail d'événements microstructuraux pour l'échantillon AMEB5 a,b,c,d) correspondent au carré blanc dans la carte ε_{22} et e,f) correspondent au carré blancs dans la ε_{11}

V.1-B-c) Conclusion

Ces essais ont mis en évidence un changement dans le mode d'accommodation de la déformation du matériau à l'échelle microstructurale avec l'altération. Les surfaces observées des échantillons sains n'ont pas présenté d'initiation de la fracture finale et ce jusqu'à la rupture. Seuls de rares événements de fermeture de porosité ont pu être détectés. A l'opposé, l'échantillon altéré six fois a présenté de nombreuses localisations précoces pendant le chargement. Ces localisations traduisent l'activation de microfractures en extension ou en cisaillement aux interfaces entre les grains en fonction de leur orientation par rapport à l'axe de chargement. Malgré cet endommagement, l'échantillon conserve sa tenue mécanique. Ces endommagements localisés précoces pourraient être à l'origine du comportement de localisation observée à l'échelle macroscopique. On ne peut pas exclure la possibilité que ce type de précurseurs de la déformation existe également à l'état sain. Nous ne l'avons pas mis en évidence mais cela peut être simplement dû à un « mauvais » choix de zones d'observations. Cependant, sur quatre échantillons sains, avec six à sept positions d'observation, réparties de façon homogène, aucun mécanisme de ce type n'a été détecté. Ceci indique que nos observations sont statistiquement caractéristiques du comportement du matériau. A l'opposé, deux positions d'observation sur six ont clairement montré ces

mécanismes pour l'échantillon altéré six fois. En support à notre analyse, nous précisons qu'un essai débuté sur un échantillon de LGF altéré six fois a aussi montré ces phénomènes de microfracturations précoces (Figure 110). Malheureusement cet essai n'a pas pu être mené à terme à cause d'une défaillance du MEB.

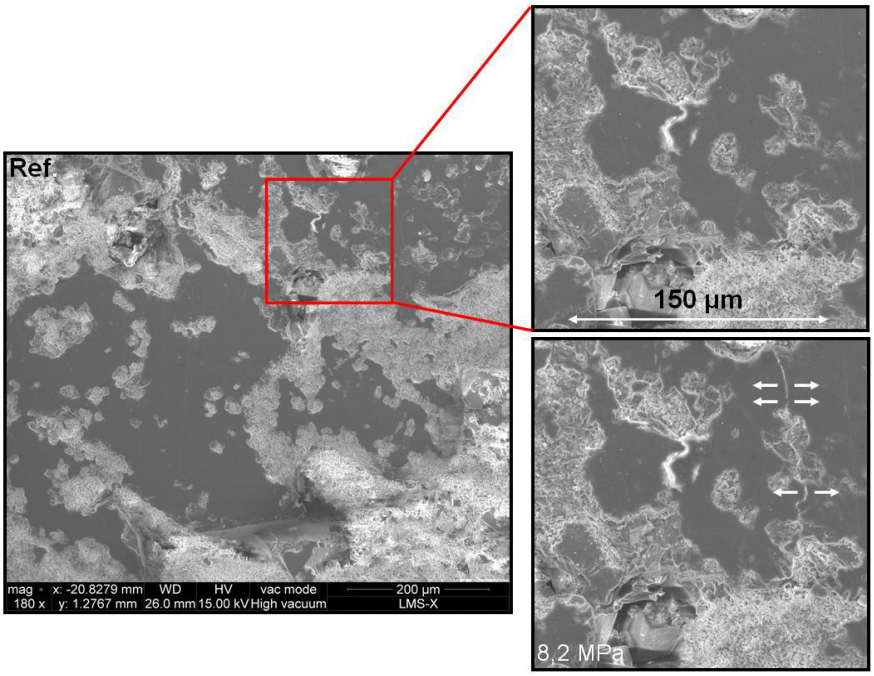


Figure 110: microstructure de l'échantillon altéré six fois de LGF à chargement nul et à 8,2 MPa de chargement

V.2- La méthode de corrélation 3D

V.2-A) Précision sur l'acquisition d'images microtomographiques

V.2-A-a) Acquisition

Les acquisitions d'images 3D dans le cadre des essais mécaniques uniaxiaux et triaxaux *in-situ* ont permis, compte tenu des limitations d'encombrement du microtomographe, d'arriver à une résolution d'image de 5 µm dans les trois directions de l'espace. Pour arriver à cette résolution nous avons utilisé les conditions d'acquisition suivantes :

- la distance source-détecteur est de 200 mm

- la distance source-centre de l'échantillon est de 20 mm

Les conditions de faisceau ont elles aussi été conservées d'un palier de chargement à l'autre, on gardera les valeurs suivantes comme références (ces valeurs pouvant subir des variations lors des campagnes d'essais durant plusieurs jours en fonction du filament) :

- une tension d'accélération de 120 kV

- une intensité de 150 µA

Les paramètres d'acquisition du volume étaient les suivants :

- une taille de capteur de 2304 x 2304 pixels avec des pixels physiques carrés de 0,05 mm

- l'acquisition de 1800 coupes, soit une coupe tous les 0,2°

- une moyenne de 8 projections par incrément angulaire afin de diminuer le bruit

L'ensemble de ces conditions conduisent à un temps d'acquisition de 2h30 par volume.

Afin d'assurer un faisceau de rayons X le plus stable possible, toutes les acquisitions précédées par une nuit sans utilisation ou bien quelques heures sans utilisation du microtomographe sont commencées par un temps de "warm up" de la source. Cette opération, d'une durée d'une heure environ, permet la montée et la stabilisation de température dans la source de rayons X, assurant la stabilité « thermique » du faisceau. Chaque acquisition de volume est par la suite précédée par une calibration. Cette calibration permet de réaliser un "blanc" qui enlève lors de l'acquisition la majorité des défauts de capteurs et qui corrige la non linéarité qu'il peut y avoir entre les RX envoyés et l'intensité vue par le capteur. Cette calibration nous permet d'assurer la bonne proportionnalité entre niveau de gris de l'image et intensité du faisceau. Dans la pratique, cette calibration commence par un offset du capteur, on acquiert un volume sans émission de RX. L'image obtenue nous donne le bruit électronique du capteur (ce bruit est la résultante de l'électrostacticité ambiante et de la température de la pièce). On place ensuite notre cellule sans échantillon devant la source et on allume la source de RX. Avant de réaliser la calibration on s'assure de la stabilité du faisceau RX, une fois cette stabilité atteinte, on réalise la calibration.

V.2-A-b) Reconstruction

Pour la reconstruction des volumes nous avons décidé de reconstruire la partie centrale de l'échantillon (2000x2000x1600 voxels) à une résolution un demi en utilisant l'option de "bruit réduit".

Lors de la reconstruction, on applique par ailleurs une correction qui réduit les effets de durcissement de faisceau que l'on observe entre la périphérie de l'échantillon et l'intérieur de l'échantillon. Le faisceau de RX de notre source est polychromatique (composé de plusieurs longueurs d'ondes), les plus petites longueurs d'ondes vont se retrouver absorbées dans les

premières couches de matière traversée, l'échantillon a alors un rôle de filtre chromatique. Lors de la reconstruction, la périphérie de l'échantillon semblera alors plus dense que la partie centrale. C'est ce gradient de densité non représentatif d'une caractéristique physique du matériau qui est ainsi corrigé.

Enfin, un dernier paramètre de reconstruction est à prendre en compte, il s'agit du centrage. On va s'assurer par superposition de la radiographie initiale et la radiographie correspondante à une rotation de 180° que le centrage est correct. Si les deux radiographies ne se superposent pas, on applique une correction manuelle au centrage pour les superposer. Le logiciel applique alors cette correction à l'ensemble des radiographies lors de la reconstruction. Cette erreur de centrage était très faible pour nos acquisitions car la cellule triaxiale miniaturisée était usinée pour être, une fois vissée au socle du microtomographe, coaxiale à quelques micromètres près avec l'axe de rotation de la platine.

Les volumes obtenus sont alors de dimensions 1000x1000x800 voxels et pèsent approximativement 1,5 Go avec une résolution de 10 µm. Ces paramètres de reconstruction nous permettent de conserver un maximum de l'information de nos volumes et nous laissent la liberté de modifier ces images pour les besoins de la corrélation d'images. La section suivante va en effet montrer qu'avoir un volume reconstruit en ½ sans post traitement n'est pas nécessairement suffisant pour assurer une bonne corrélation d'images, car ce volume est souvent très bruité et présente des variations de contraste local « dur ». Comme on le voit à l'aide d'un zoom montrant les pixels d'un volume reconstruit à ½ sans post traitement dans la Figure 111.

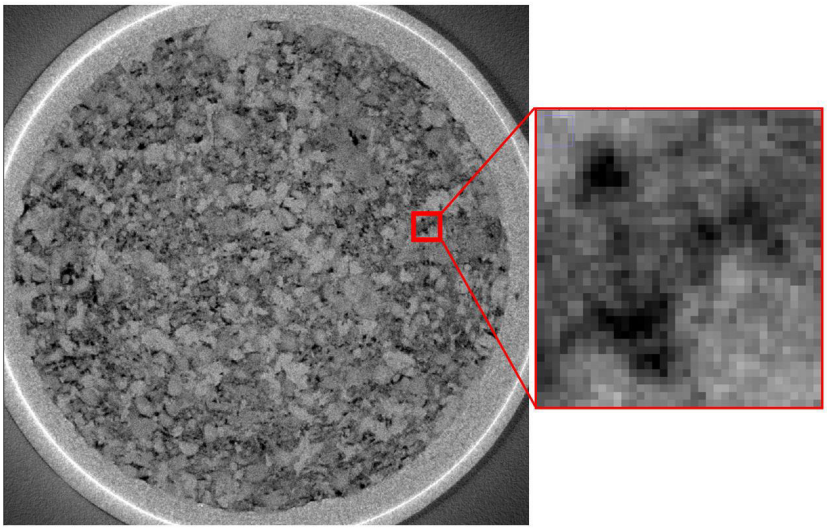


Figure 111 : exemple de contraste local « dur » dans un volume en résolution ½ non moyenné 1000x1000x800 voxels

V.2-B)Méthodes d'estimation et de minimisation des erreurs en CIN 3D

L'estimation des erreurs sur la mesure du champ de déplacement en CIN 3D se fait par les mêmes méthodes que celles décrites pour la CIN 2D optique et MEB. Pour imposer une déformation apparente maîtrisée de l'échantillon, on peut modifier la géométrie du tomographe pour changer très légèrement le grandissement (par ex. en reculant légèrement l'axe de rotation par rapport à la source, on diminue le grandissement). L'analyse par CIN des paires d'images ainsi obtenues et la confrontation des déplacements locaux mesurés aux déplacements théoriques associés à une dilatation homogène permet d'obtenir les courbes d'erreur systématiques et aléatoire associées à nos conditions d'imagerie.

Les premiers essais de quantification d'erreur sur le déplacement de la méthode CIN 3D ont été menés sur des volumes reconstruit en ½ que nous avons moyennés par une moyenne des voxels voisins, les volumes étaient donc de dimension 500 x 500 x 400 voxels codés en 8 bits. Cette opération sur le volume a été réalisé car la CIN 3D ne fonctionnait pas sur les volumes en résolution 1/2 car le bruit de l'image est trop important et rend les contrastes locaux trop "durs". Une représentation de l'image après ce traitement est donnée dans la Figure 112 et montre un adoucissement des contrastes locaux ainsi qu'une diminution du bruit de l'image.

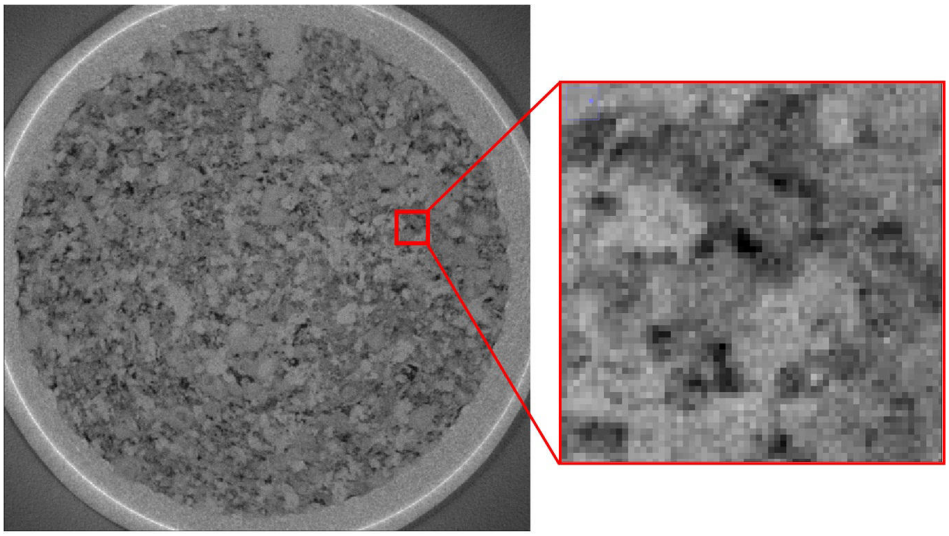


Figure 112:exemple de contraste locaux moins "durs" après la procédure de réduction d'un volume reconstruit en 1/2 de 1000x1000x800 voxel à 500x500x400 voxels

Le résultat sur les courbes d'erreurs aléatoires et systématiques est donné dans la Figure 112 pour un domaine de corrélation de 40 x 40 x 40, et une grille de 30 x 30 x 30 points (avec recouvrement des domaines de corrélation).

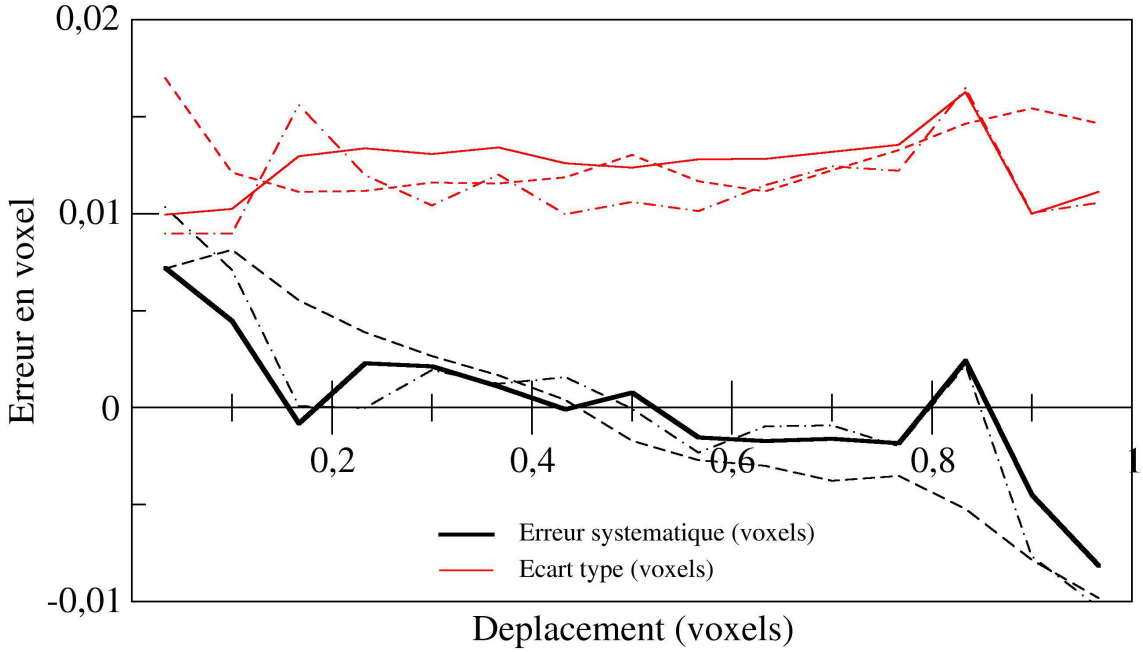


Figure 113: courbe d'erreurs aléatoires et systématiques pour une grille de 30 x 30 x 30 avec une taille de domaine de corrélation de 40 x 40 x 40, appliquée sur une image de 500x500x400 voxels, obtenue par moyennage d'une image de plus haute résolution (voxel de 20 micromètres)

On observe que dans ces conditions, l'erreur systématique dans les trois directions n'excède pas 0,017 voxel et l'erreur aléatoire n'excède pas 0,02 voxel sur la mesure de déplacement.

L'inconvénient de travailler sur des reconstructions en 1/4 de nos volumes est la perte de résolution de l'image qui conduit à une perte d'information locale.

Suite à ces premiers essais nous avons appliqué la méthode de moyenne des voxels voisins utilisée et présentée dans la partie 4.III-B-2) aux volumes reconstruits en 1/2. Nous avons choisi la moyenne sur 125 voxels pour la valeur de niveau de gris d'un voxel. Cette opération permet de rendre plus "doux" les contrastes locaux tout en limitant la perte d'information locale, puisque la résolution est peu influencée par cette opération. Le résultat de cette observation est présenté dans la Figure 114. De plus, ce traitement rend la variation de niveaux de gris plus continus, ce qui favorise une meilleure interpolation des niveaux de gris lors de la corrélation d'images.

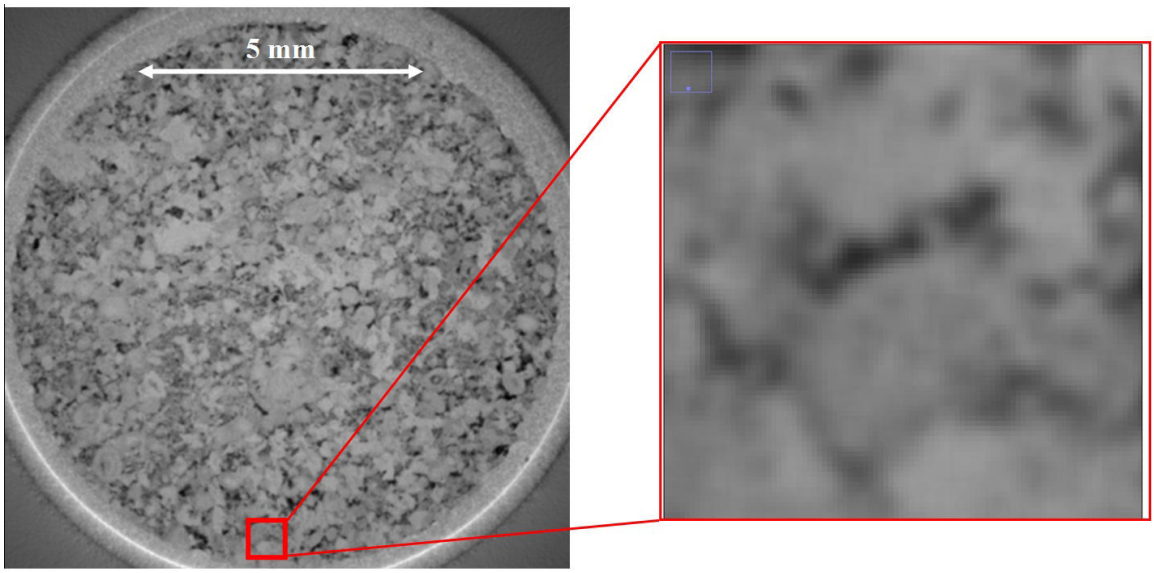


Figure 114: Exemple d'image reconstruite à 1/2(1000x1000x800 vxls) et ayant subi une moyenne à 125 voxels. Le zoom associé montre l'absence de contraste "dur" de niveaux de gris assurant une bonne corrélation d'images

Les résultats sur les mesures d'erreurs aléatoire et systématique sont présentés dans la Figure 113. On observe que l'erreur aléatoire est plus importante que dans le cas de la reconstruction 1/2 aux environs de 0,04 pixel d'erreur et que l'erreur systématique bien que faible, est doublée avec un maximum à 0,02 pixel d'erreur sur la valeur de déplacement. Cette erreur rapportée aux dimensions d'une base de mesure équivalente pour le volume en 500x500x400 est divisiée par 2 et on retrouve des erreurs équivalentes. Nous avons traité en CIN 3D deux volumes en résolution 1/4 et un volume en résolution 1/2 pour les essais menés sous confinement.

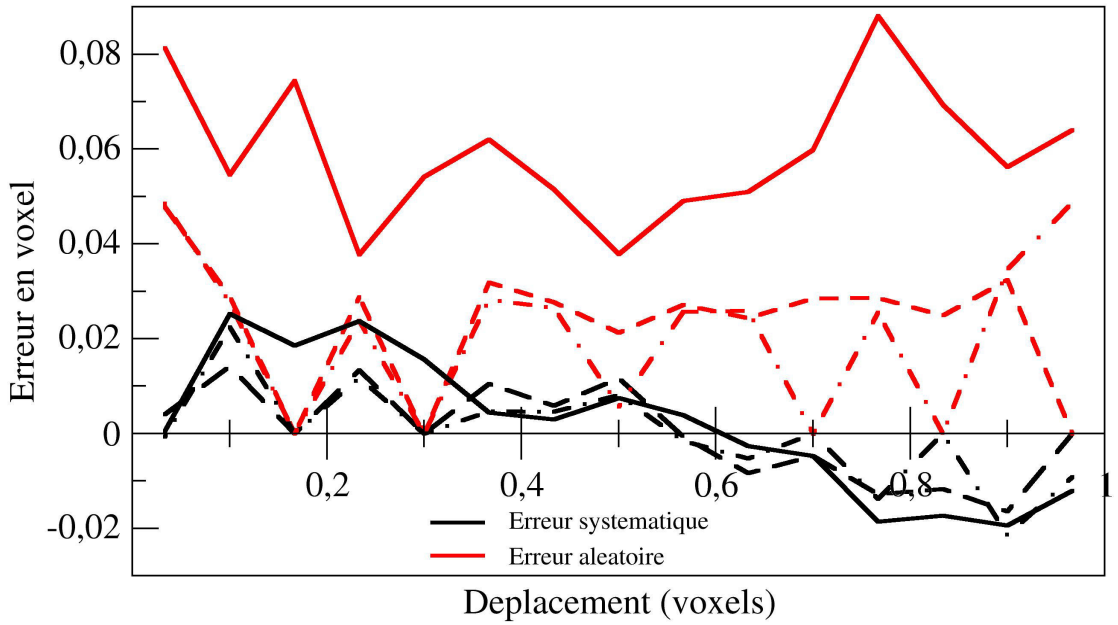


Figure 115: courbe d'erreurs aléatoires et systématiques pour une grille de 40 x 40 x 40 avec une taille de domaine de corrélation de 40 x 40 x 40, appliqué sur une image de 1000 x1000x800 voxels avec un moyennage de 125 voxels (voxels de 10 µm)

V.3-Les résultats obtenus en CIN-3D

V.3-A) Premier essai uniaxial

Nous présentons dans cette section les premiers résultats obtenus en CIN 3D sur un essai sans confinement, ayant permis de valider l'applicabilité de la méthode à notre carbonate. La courbe de chargement de l'échantillon présente des fluctuations, qui sont dues à un effet de dilatation thermique de la cellule, laquelle est suffisamment près de la source RX pour s'échauffer. Cet effet ne s'est pas retrouvé dans les essais avec du confinement. Car la présence du fluide de confinement contrôlé en pression permet de compenser cet effet. L'échantillon a rompu très rapidement (10 MPa) d'où un faible nombre de paliers de chargement. Le chargement et l'effet thermique sont observables sur la Figure 116.

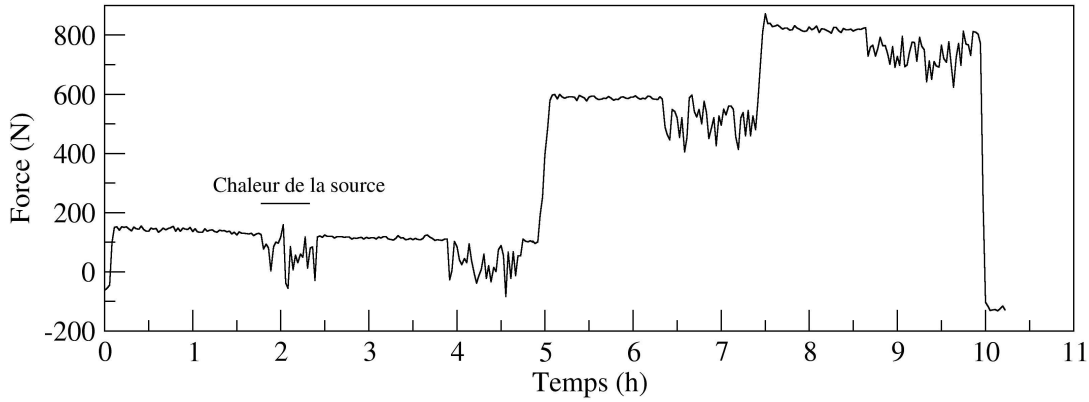


Figure 116: courbe de chargement d'un échantillon sain en condition uniaxiale

On observe sur la carte de déformation équivalente la fracture qui s'est développée lors de la rupture (dans la Figure 117). Nous avons ici utilisé une grille carrée de 30 x 30 x 30 points, sur une image en résolution 1/4 avec des domaines de corrélation de 40 x 40 x 40. Par la suite, afin perdre le moins possible d'information microstructurale, nous avons créé un masque noir qui permet de réaliser la corrélation d'images à l'ensemble du volume cylindrique imagé.

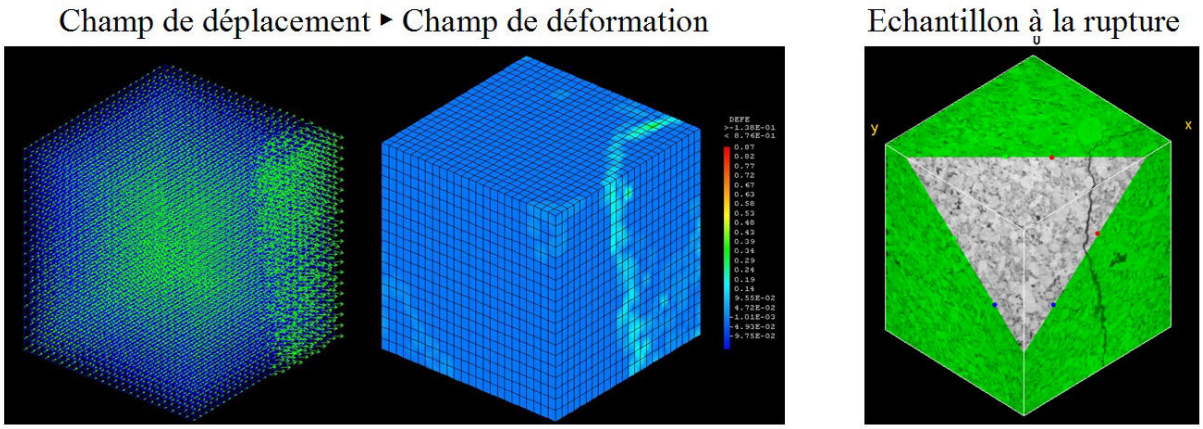


Figure 117: carte de champ de déplacement et de déformation équivalente issue d'un échantillon sain en condition uniaxiale 3D en résolution 1/4 et microstructure associée après rupture de l'échantillon en résolution 1/2

V.3-B)Les premiers essais à 5MPa de confinement

Après les premiers essais de faisabilité menés sans pression de confinement, qui confirment l'applicabilité de la méthode de CIN 3D avec le contraste naturel de nos roches, nous avons pu réaliser deux campagnes successives de tests triaxiaux à 5 et 10 MPa de confinement.

La Figure 118 présente un schéma du protocole de chargement appliqué aux échantillons. Tout comme pour les essais triaxiaux, avant le chargement en conditions triaxiales une

première montée en conditions hydrostatiques assure la mise en place de l'échantillon et la montée de la pression de confinement à 5 ou 10 MPa. Une fois cette valeur de confinement atteinte, l'image de référence est réalisée puis le chargement est effectué par palier de pression jusqu'à la rupture de l'échantillon. La valeur de chargement à chaque palier n'est cependant pas fixée. Elle dépend des observations microstructurales effectuées sur les volumes reconstruits au palier précédent, ainsi que de l'évolution des courbes de relaxations qui sont différentes pour chaque essai. Nous avons basé nos prévisions de rupture des échantillons sur les essais triaxiaux macroscopiques. La rupture de l'échantillon sain a donc été estimée à une contrainte déviatorique d'environ 35 MPa, l'échantillon altéré trois fois à 30 MPa et l'échantillon altéré six fois à 25 MPa.

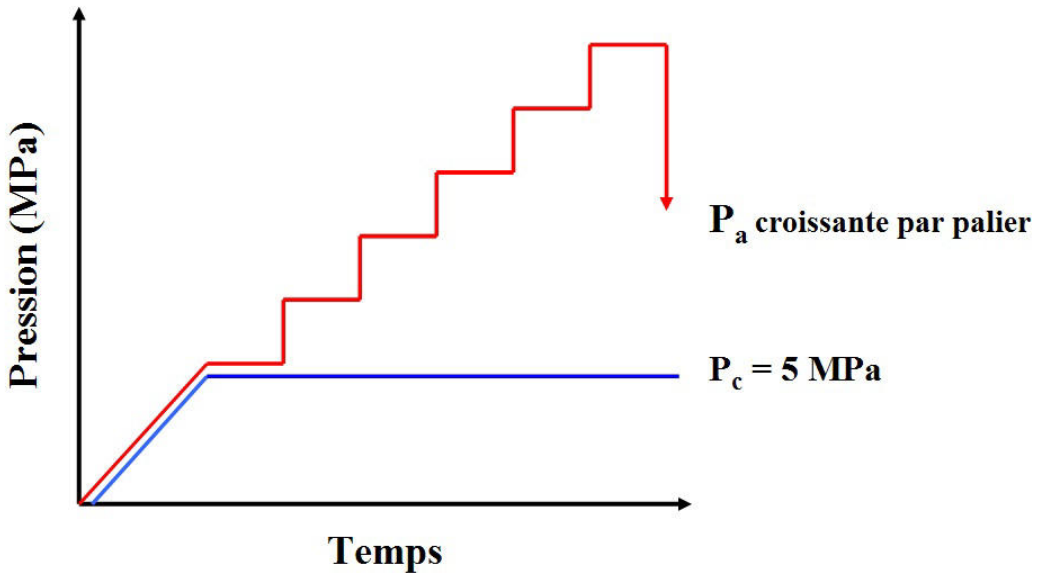


Figure 118: schéma de principe des chemins de chargement appliqués aux échantillons à 5 MPa de confinement

V.3-B-a) Cartographie de l'échantillon sain

Comme nous connaissons à présent le comportement des échantillons sains par les essais macroscopique et MEB, nous savons qu'ils présentent une phase de chargement élastique assez importante. Afin d'optimiser la durée de la campagne expérimentale, nous avons commencé le chargement par des paliers de chargement importants (~5MPa) cette précaution permet de diminuer le nombre de paliers pendant lesquels les déformations restent faibles et les localisations supposées inexistantes d'après les essais 2D macroscopique optique, MEB et la première série d'essais uniaxiaux 3D. Le protocole de chargement est résumé sur la Figure 119.a. A partir du quatrième palier (à 25 MPa de contrainte axiale), nous avons diminué les incréments de charge pour mieux appréhender les localisations éventuelles de la déformation

et les précurseurs de la rupture théorique de l'échantillon (~35 MPa de contrainte déviatorique). La rupture de cet échantillon a finalement eu lieu à ~36 MPa de contrainte axiale (31 MPa de contrainte deviatorique) au cours du chargement vers le huitième palier. Les cartes de déformations ont été obtenues sur un volume reconstruit à l'échelle 1/4 et l'image est de résolution 20 µm /voxels. La grille est de 30 x 30 x 30 voxels, et une taille de domaine de corrélation de 30 x 30 x 30. Les domaines de recherche sont de 3 x 3 x 3 voxels avec un coefficient de corrélation maximum de 0,3. Le calcul des déformations effectuées par le logiciel Cast3M repose sur un schéma d'intégration à 8 noeuds. La base de mesure résultante est de ~450 µm. La Figure 120.b présente les courbes de déformations en ε_{11}, ε_{22} et ε_{33}, obtenues par CIN à cinq paliers de chargement. Ces mesures sont complétées par la Figure 120.a qui présente les cartes de déformations équivalentes de quatre de ces cinq points dont sont issues les mesures de déformation globales, selon une tranche réalisée dans le volume complet. Les courbes de déformation sont cohérentes avec les courbes obtenues lors des essais triaxiaux macroscopiques à confinement équivalent (IV.1-B) puisque les valeurs de déformations avant la rupture sont inférieures à 0,2%. Si l'on s'intéresse maintenant aux cartes de déformation équivalente, on observe qu'il n'y a pas de localisation de la déformation au sein de l'échantillon avant la rupture, qui intervient soudainement. La carte de déformation après la rupture de l'échantillon indique une localisation de la déformation en bande. En observant l'échantillon imagé après l'essai (Figure 119.b) on confirme qu'une bande de cisaillement s'est effectivement développée dans l'échantillon.

Le module d'Young effectif calculé est de 24,5 GPa. Cette valeur est cohérente au regard des valeurs obtenues pour un échantillon sain en conditions de faible confinement macroscopique et les valeurs obtenues en CIN 2D optique en conditions uniaxiale de chargement. La valeur légèrement supérieure de ce module effectif, comparé aux mesures à faible confinement macroscopique, peut provenir de la pression de confinement de 5 MPa qui rigidifie le matériau.

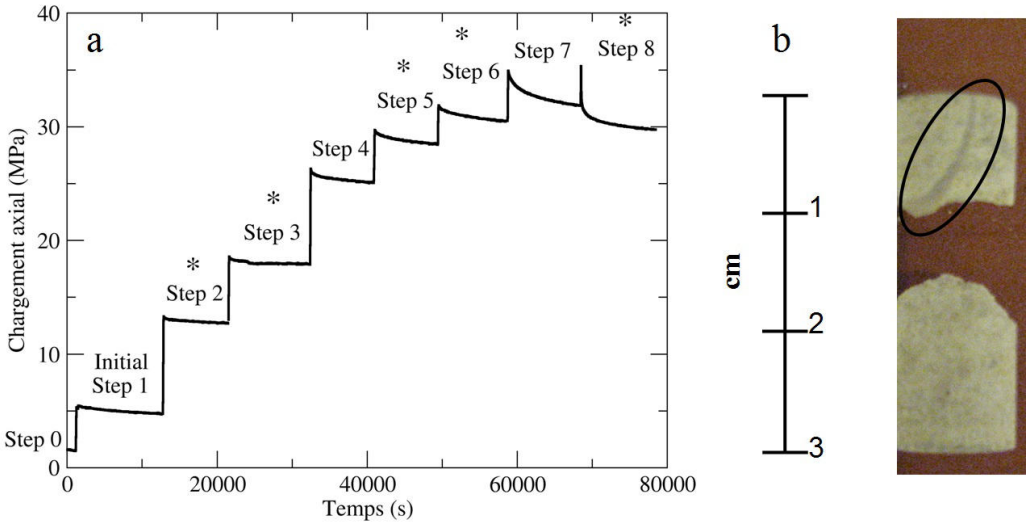


Figure 119: a) courbe de chargement de l'échantillon sain confiné à 5MPa, les étoiles indiquent les points de mesures des déformations par CIN b) aspect de l'échantillon en sortie de cellule, le fuseau noir indique un bioclaste majeur

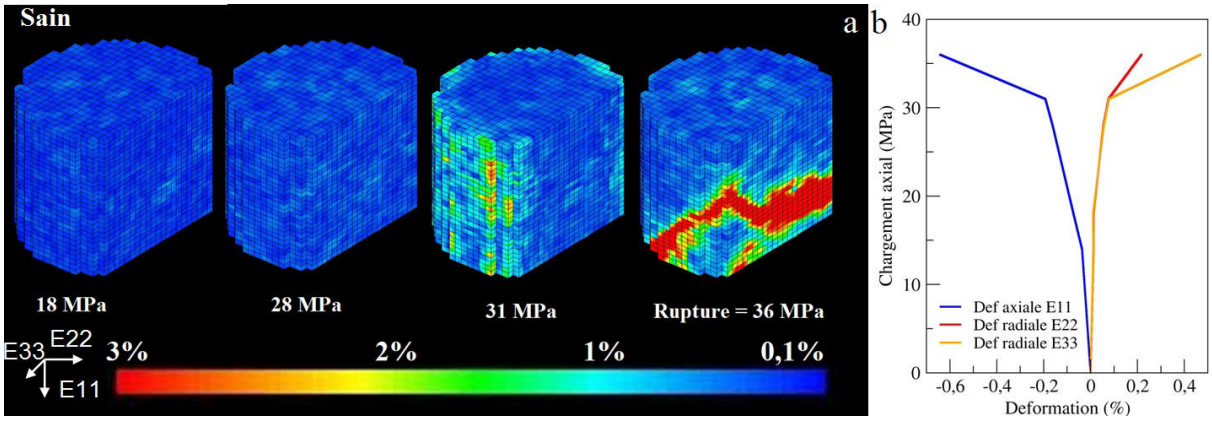


Figure 120: a) carte de déformation équivalent à quatre état de chargement b)courbe de déformation issue de ces cartographies

L'étude microstructurale de l'échantillon à l'aide des volumes microtomographiques nous permet l'identification de deux mécanismes principaux. La coupe selon un plan en Y-Z dans un les volumes issus du micro scanner à une résolution de 1/2 non moyennée présentée dans la Figure 121 illustre ces mécanismes. Le premier est la formation d'une bande de cisaillement, visible grâce au mouvement vertical effectué par le bloc inférieur et par la propagation de la fracture avec un angle d'environ 40° par rapport à l'horizontale (trait blanc sur la Figure 121.b). L'activation de la bande de cisaillement s'accompagne d'ouvertures de fractures (verticales) perpendiculairement au sens de compression (carré rouge dans la Figure 121.a et b) dans une zone proche de la fracture principale. Comme on le voit sur la cartographie des déformations équivalentes, il n'y a pas d'autres zones de localisation que cette fine bande (2 à 3 voxels en résolution 1/2 soit 20 à 30 µm) et les deux blocs séparés par la fracture principale restent intacts.

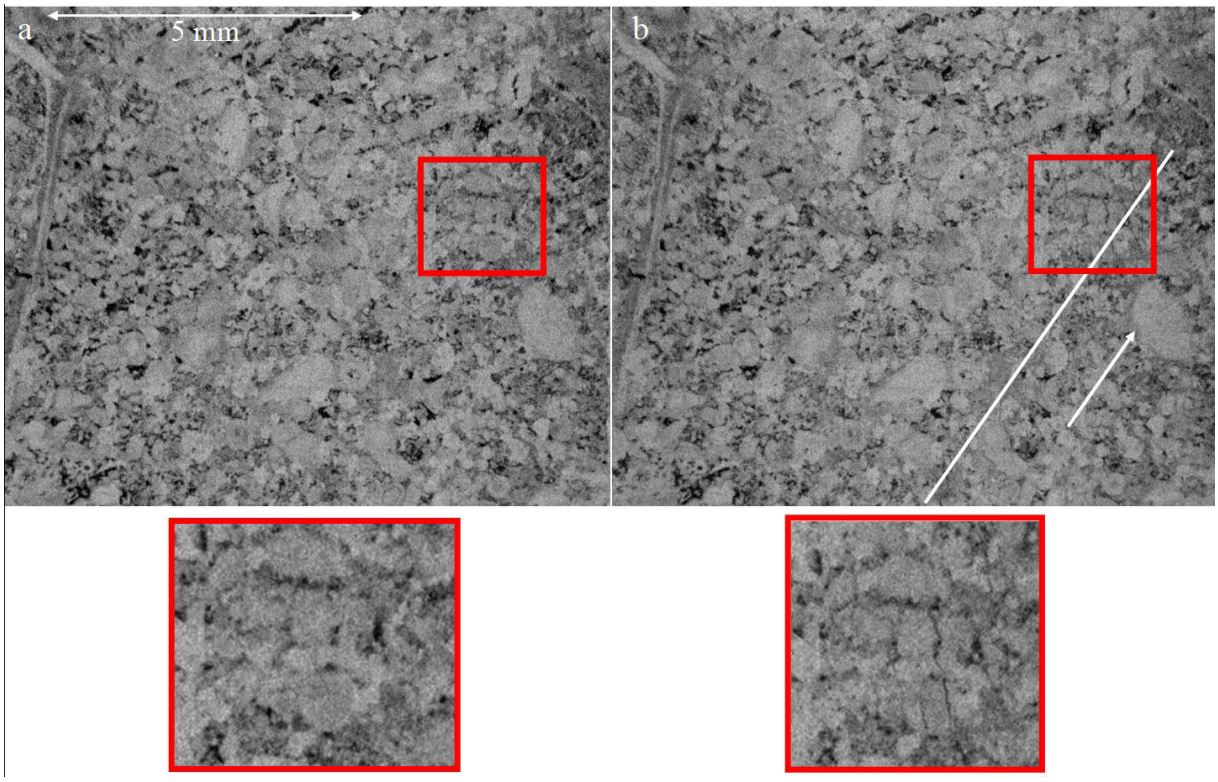


Figure 121:a) échantillon intact et zoom sur une zone d'intérêt dans le carré rouge b) échantillon sain après rupture. Le trait blanc indique la bande de cisaillement, la flèche le sens de déplacement du bloc inférieur et le carré rouge une zone de fracturation

V.3-B-b) Cartographie de l'échantillon altéré trois fois

En nous basant sur ces deux expériences précédentes ainsi que sur les essais triaxiaux macroscopiques nous avons pu déterminer nos paramètres de chargement. Nous avons fait le choix de charger l'échantillon à chaque palier d'environ 5 MPa (Figure 122.a). Les décrochements en pression axiale observés en fin de palier de chargement (qui apparaissent dans la Figure 122.a) correspondent à un faux contact électrique et ne sont pas représentatifs de la réponse mécanique. La rupture de l'échantillon a été déterminée par la comparaison systématique de chaque volume par rapport au volume initial sur les images en résolution ½. Ce qui est fait par l'observation de plusieurs tranches, sans recours à la CIN, qui ne peut être menée après chaque palier pendant les campagnes d'essai menées à l'IFPEN, car le logiciel CMV3D n'y est pas installé. Au 5eme palier nous avons observé un mouvement relatif d'un bloc par rapport à l'autre le long d'une bande. La rupture est également marquée par une chute significative du chargement axial. On note cependant que l'échantillon supporte toujours une charge résiduelle, ce qui n'était pas le cas pour le matériau sain. L'échantillon en sortie de cellule ne présentait pas de fracture visible à l'œil et semblait encore parfaitement cohésif comme on le voit sur la Figure 122.b. Nous avons observé la surface de l'échantillon à la

loupe binoculaire pour tenter d'y trouver une zone de compaction plus importante mais rien n'était visible. La rupture de l'échantillon a eu lieu à ~27 MPa de chargement axial (22 MPa de contrainte déviatorique). La diminution de la valeur de contrainte à la rupture est cohérente également avec les essais macroscopiques qui fournissent un niveau de rupture à 31,6 MPa à ce niveau d'altération.

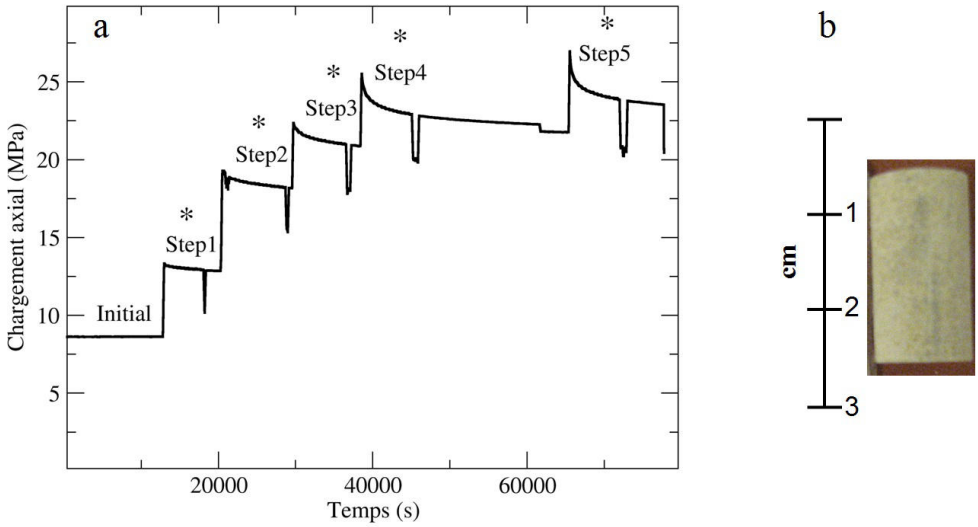


Figure 122: a) courbe de chargement de l'échantillon altéré 3x confiné à 5MPa, les étoiles indiquent les points de mesures des déformations par CIN b) aspect de l'échantillon en sortie de cellule

Les cartes de déformations ont été obtenues sur un volume reconstruit à l'échelle 1/2 moyenné pour donner une image de résolution 10 µm /voxels afin de conserver une information plus précise dans l'image, bien que les niveaux de bruit soient supérieurs à ceux d'une reconstruction 1/4. La grille est de 40 x 40 x 40 voxels, la taille des domaines de corrélation est de 30 x 30 x 30. Les domaines de recherche sont de 3 x 3 x 3 voxels avec un coefficient de corrélation de 0,3. La base de mesure résultante est de ~350 µm.

L'étude des cartes de déformations équivalentes (Figure 123.a) ne montre pas de localisation de la déformation pour des valeurs de chargement inférieures à 18 MPa. Plus généralement, la déformation moyenne mesurée avant 18 MPa de chargement est à la limite de résolution de la méthode. A partir de 18 MPa de chargement on observe dans la partie inférieure du volume une zone de localisation dominée par la couleur bleu cyan, dont la valeur de déformation est légèrement inférieure à 1%. La déformation moyenne de l'échantillon visible dans les trois directions sur la courbe issue de la CIN (Figure 123.b) est de 0,03% pour ε_{22} et ε_{33} elle est de 0,14% pour ε_{11}. Cette localisation est clairement identifiable à 26 MPa de chargement par une dominante de couleur verte indiquant une déformation locale d'environ 1,5%. Cette déformation semble être localisée dans une bande, cependant, la partie inférieure de cette

bande est manquante et ne permet pas de la délimiter. Après la rupture à 27 MPa, cette localisation se confirme et la bande présente une déformation en son centre supérieure à 3%. On remarque par ailleurs que la périphérie de la bande présente un gradient de déformation allant de la couleur bleu cyan (~1%) à la couleur orange (~2,5%) jusqu'à la couleur rouge de la partie centrale.

Nous avons pu estimer le module d'Young effectif de notre carbonate altéré trois fois à 15,3 GPa. Cette valeur bien que plus faible que pour les essais macroscopiques à faible confinement (19 GPa) n'est obtenue qu'à l'aide de quatre points et reste dans une gamme de valeur cohérente. On observe par ailleurs que le module d'Young diminue avec l'altération.

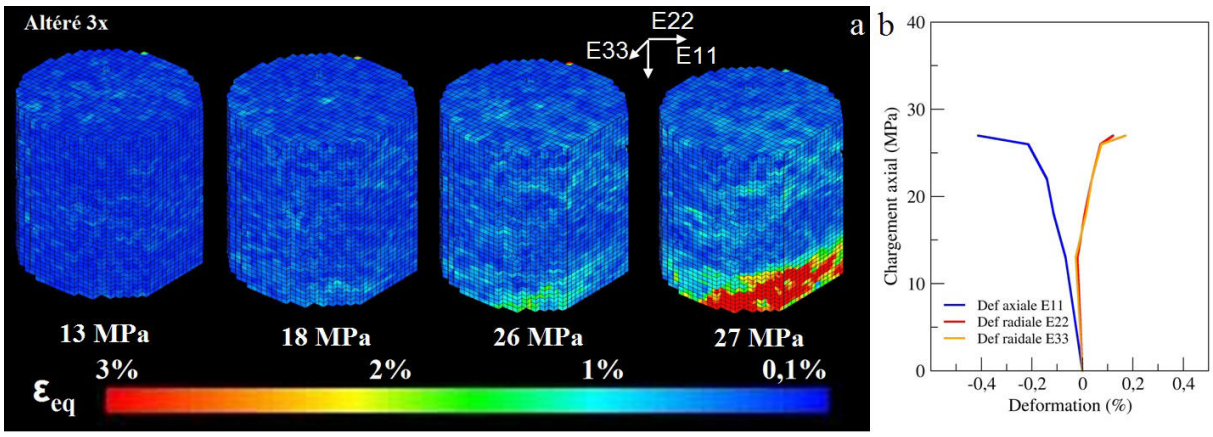


Figure 123: a) carte de déformation équivalent à quatre états de chargement et b) courbe de déformation issue de ces cartographies pour l'échantillon altéré 3x

Nous avons aussi reconstruit le volume décalé de 120 voxels supplémentaires vers le bas (limite maximum de la zone imagée), ce qui a permis de confirmer que la localisation de la déformation se fait selon une bande (Figure 124) lors de la rupture.

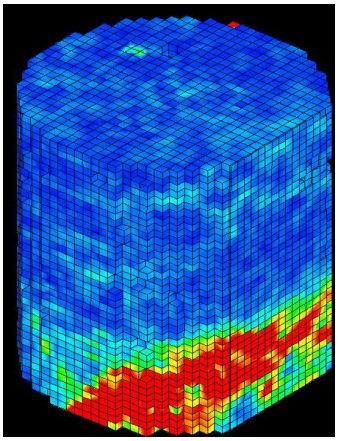


Figure 124: cartographie de l'échantillon altéré 3x après rupture recalé pour visualiser la limite de la bande

L'étude microstructurale de l'échantillon à l'aide des volumes microtomographiques nous a permis d'identifier la formation d'une zone de compaction cisaillante en bande, associée à de l'effondrement de porosité. L'effondrement (remplissage par débris) et la fermeture (déformation) de pores sont visibles dans les encadrements rouges de la Figure 125.b1 et b2. De rares événements de fracturation intra grains sont également visibles au sein de la bande. Cette bande présente un angle d'environ 30° par rapport à l'horizontale, on peut donc qualifier cette bande de "bande de cisaillement en compaction", comme décrit dans les grès par Fortin *et al.*, (2005). Ce type d'endommagement n'entraîne pas la perte de cohésion du matériau, ce qui est cohérent avec l'état de l'échantillon après sortie de la cellule. Jusqu'à maintenant, ce type de comportement n'avait pas été clairement mis en évidence dans des carbonates pendant des essais mécaniques. Seuls les indices microstructuraux obtenus en condition *post-mortem* (Vajdova *et al.*, 2012; Zhu *et al.*, 2011) permettaient de supposer l'existence de localisation en bande dans les carbonates.

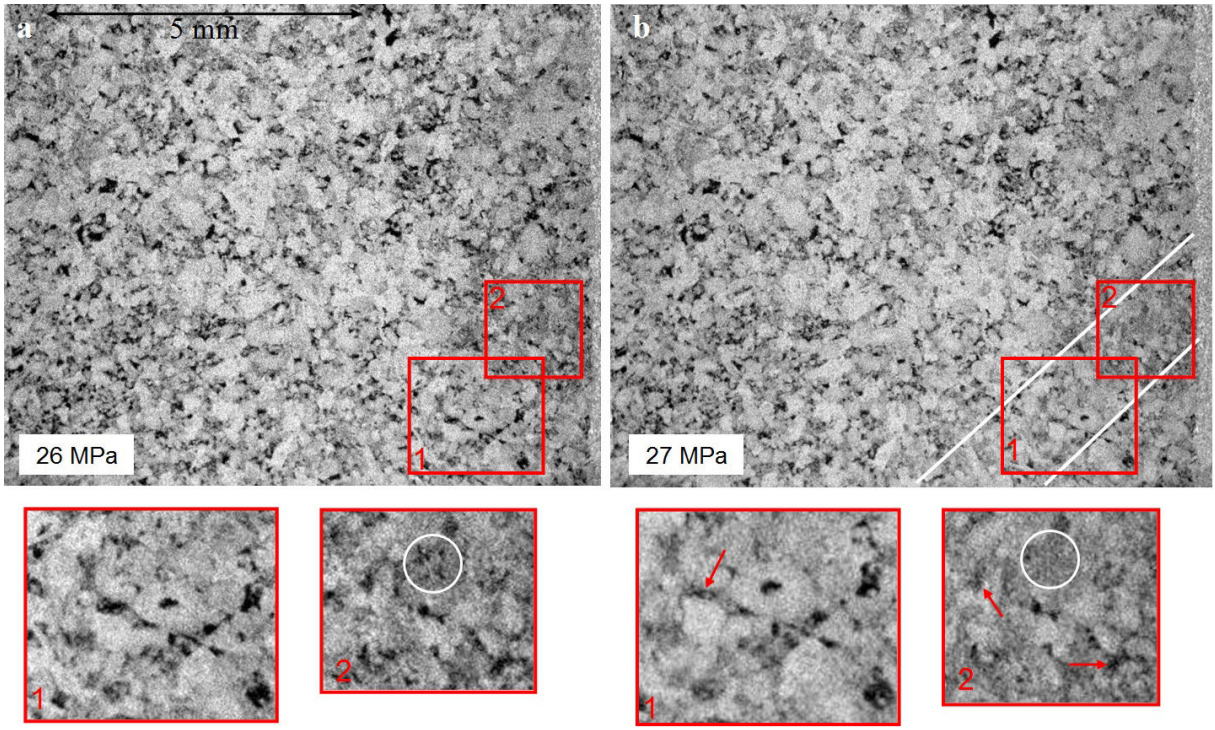


Figure 125: volume de l'échantillon altéré 3x à25 MPa de chargement et après la rupture. Les carrés rouges présentent les zones de zoom, le cercle blanc de la fermeture de porosité par bouchage, les flêches rouges du pore collapse et les lignes blanche l'étendue observée de la bande

V.3-B-c) Cartographie de l'échantillon altéré six fois

Le chargement de l'échantillon altéré six fois a été fait de façon très progressive. En effet, les résultats obtenus à l'aide du MEB en CIN-2D ont montré un endommagement précoce des échantillons lors de leur chargement, avec une microfracturation intra et inter granulaire. La Figure 126.a présente les paliers de chargement pour l'échantillon altéré six fois. Bien que les conditions de chargement ne soient pas ici uniaxiales, nous avons jugé nécessaire de ne pas charger trop fortement l'échantillon pour ne pas provoquer une rupture trop rapidement. Nous souhaitons en effet observer l'initiation et le développement des localisations de la déformation avec le chargement axial. Dix paliers de chargement avec acquisitions ont été réalisés. La rupture semble avoir eu lieu à 23 MPa de contrainte axiale (18 MPa de contrainte déviatorique). Il a été difficile de décider quand arrêter l'essai car les observations microstructurales *in-situ* ne montraient rien de particulier et car l'échantillon tenait encore la charge. Nous avons décidé d'arrêter l'essai lorsque la force n'augmentait plus avec la sollicitation mécanique.

A posteriori nous avons déduit de cet essai une méthode de détermination de la rupture pour les échantillons se déformant de façon ductile. En l'appliquant à cet essai on trouve une contrainte de rupture de 23 MPa. Cette méthode sera développée dans la section suivante

(V.3-B-d)). L'échantillon en sortie de cellule était extrêmement endommagé, comme on le voit dans la Figure 126.b. On observe deux blocs principaux qui semblent avoir été séparés selon un plan incliné traversant l'échantillon; entre ces deux blocs de nombreux débris de taille moyenne et une quantité de poudre ont été récupérés. Cette observation suggère qu'il y a eu développement d'une bande de déformation dans laquelle la roche a subi un broyage intense.

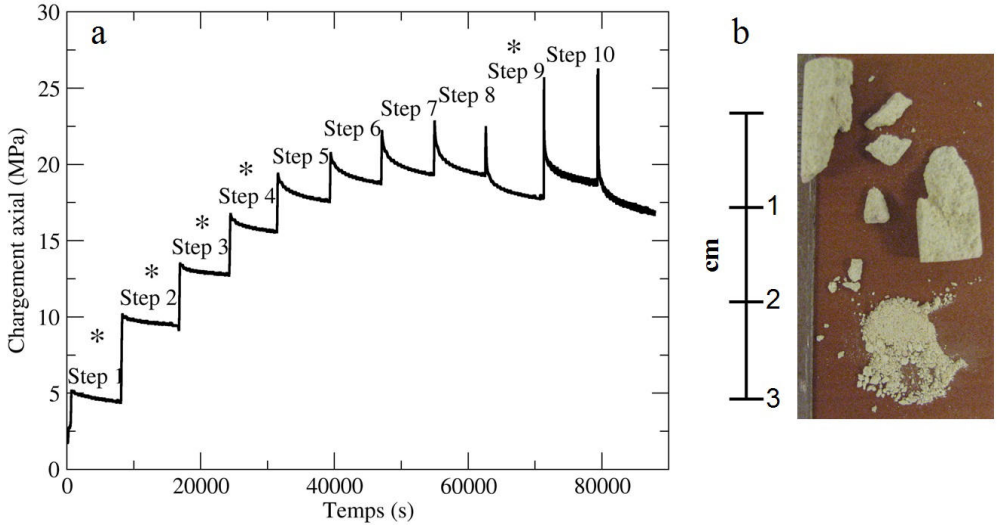


Figure 126: a) courbe de chargement de l'échantillon altéré 6x confiné à 5MPa, les étoiles indiquent les points de mesures des déformations par CIN confinement b) aspect de l'échantillon en sortie de cellule

Les cartes de déformations ont été obtenues sur un volume reconstruit à l'échelle 1/4 moyennée pour donner une image de résolution 20 µm /voxels. La grille est de 30 x 30 x 30 voxels, la taille des domaines de corrélation est de 30 x 30 x 30. Les domaines de recherche sont de 3 x 3 x 3 voxels avec un coefficient de corrélation de 0,3. La base de mesure résultante est de ~450 µm.

Les cartes de déformations équivalentes sont présentées dans la Figure 127.a. On observe dès 13 MPa une localisation de la déformation dans la partie supérieure droite de l'échantillon indiquée par la flèche blanche dans la Figure 127.a. La déformation qui apparaît au centre du volume correspond à un artefact de reconstruction entre l'image de référence et l'image à 13 MPa de chargement, car elle ne persiste pas à 15 MPa. D'après la courbe de déformation moyenne obtenue par CIN (Figure 127.b), la déformation axiale est de 0,1% et les déformations radiales semblent êtres faibles. A 15 MPa la localisation indiquée par la flèche blanche se confirme et commence à s'étendre vers le bas de l'échantillon. Cette propagation se retrouve à 20 MPa et prend l'apparence d'une bande. Enfin, à 23 MPa, on observe une très large bande de déformation occupant toute la partie inférieure droite du volume. Cette bande

de déformation n'est pas homogène; on trouve à sa périphérie des déformations de 2% et en son centre des déformations supérieures à 6%, présentes sous forme d'îlots entourés de déformation variant entre 2 et 3%. Ces hétérogénéités au sein de la bande de déformation peuvent être associés aux fragments de roches identifiés en sortie de cellule.

Le module d'Young effectif issu de cet essai est de 9,5 GPa. Cette valeur montre que l'on a bien une diminution du module d'Young avec l'altération ce qui confirme les observations aux différentes échelles que nous avons pu réaliser.

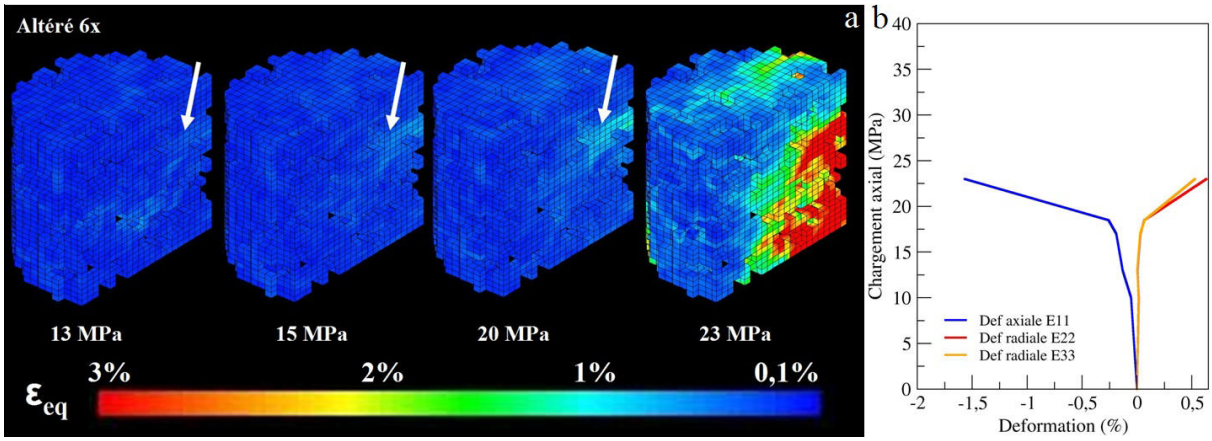


Figure 127: a) carte de déformation équivalent à quatre état de chargement les flèches blanches indiquent la localisation précoce b) courbe de déformation issue de ces cartographies pour l'échantillon altéré 6x

L'étude microstructurale de cet échantillon a été plus difficile de par la complexité des déformations. En effet, bien que les cartes de déformations indiquent nettement une large bande de déformation, lorsque nous étudions la zone d'intérêt sur une image à une résolution de 10 µm/voxel, il était impossible de détecter les indices microstructuraux de l'endommagement. Afin d'affiner notre recherche, nous avons :

- dans un premier temps calculé le champ de déplacement moyen non pas sur l'ensemble du volume mais dans un volume réduit, inclus dans la zone non déformée du bloc supérieur, visible dans la cartographie des déformations.
- Ce champ de déplacement a ensuite été appliqué à l'image de référence afin de lui appliquer un déplacement moyen identique à celui de l'image déformée, cette procédure est l'équivalent du processus de registration du logiciel Avizo.
- Une fois cette procédure effectuée, nous avons soustrait les images après calage des niveaux de gris.

Le résultat est présenté dans la Figure 128. On observe que le bloc de référence ne se déforme pas localement, il présente des valeurs de niveaux de gris homogènes. L'autre bloc par contre présente des niveaux de gris variables, traduisant des déplacements locaux qui différent de la valeur moyenne obtenue dans le bloc de référence. Cette opération nous a permis de mieux cerner les zones d'intérêt et d'avoir à l'aide du logiciel CMV un calage suffisamment précis entre les volumes pour pouvoir zoomer sur les microstructures. On observe, au cours du chargement, de la microfracturation intra granulaire qui se développe à partir des interfaces entre les grains (Figure 128 c et d). Ces micro fractures sont en tout point semblables à celles observées au MEB sur l'échantillon altéré six fois. Elles sont cependant bien plus difficiles à observer visuellement, car étant à la limite de la résolution du microtromographe, et celà même avec une reconstruction à une résolution de 10 µm.

Cet essai présente tout l'intérêt de coupler les essais mécaniques à la CIN, qui permet de mesurer et détecter des localisations des déformations à une résolution sub voxel. Une amélioration de notre protocole d'analyse serait d'utiliser le champ de déplacement (et non pas les valeurs de déplacement moyen) pour effectuer la soustraction d'image. Cette procédure n'a pu être développée dans le cadre de cette thèse mais fait l'objet d'un développement au laboratoire Navier.

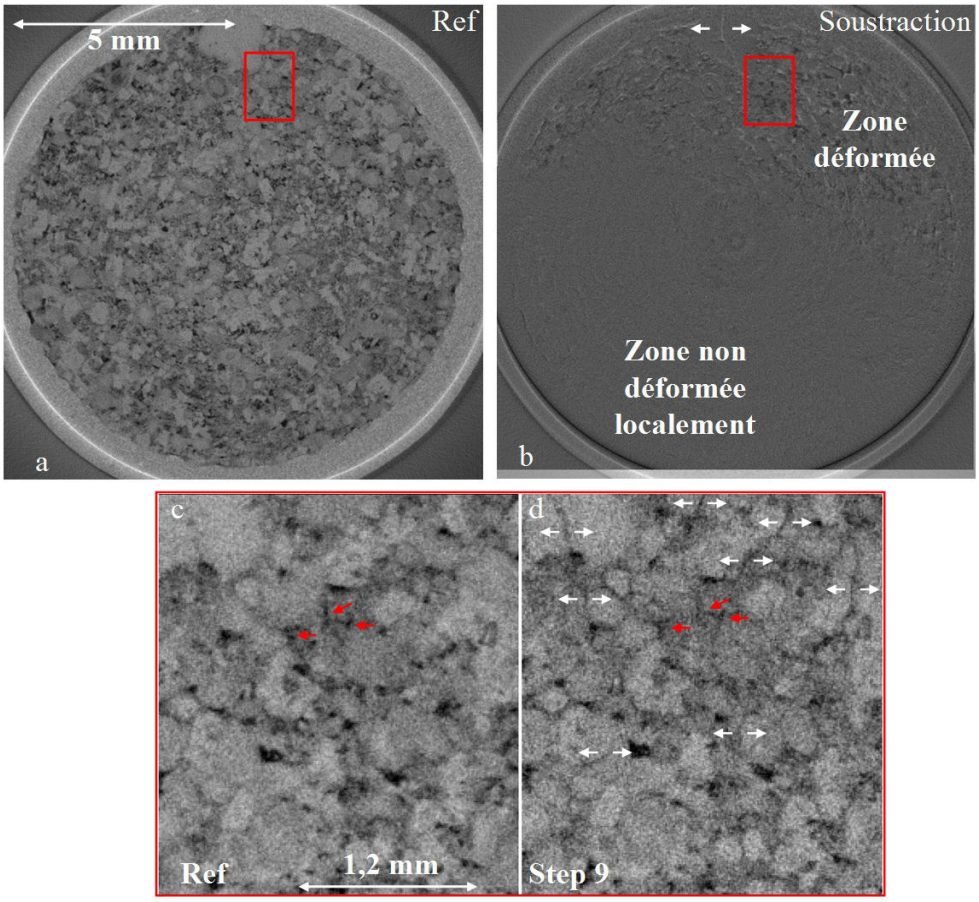


Figure 128:a) volume de référence et zone d'interet en rouge b)image issue de la soustraction entre l'étape 9 de chargement et de l'image de référence c) zoom de la zone d'intérêt mentionnée par le carré rouge à l'état de référence, les flèches rouges indiquent les pores à observer, d)zone identique au 9 eme état de chargement, les flêches rouge ciblent les même pores qui se sont effondrés et les flêches blanches indiquent les ouvertures de fracture

V.3-B-d) Conclusions sur ces trois essais

L'échantillon sain se déforme de façon fragile, sans pré-localisation de la déformation jusqu'à la rupture. Cette observation est comparable à ce que l'on a observé en CIN optique et dans l'enceinte du MEB. L'échantillon altéré trois fois présente une localisation précédant la rupture selon une bande de compaction cisaillante. Les blocs séparés par cette bande restent cependant très peu déformés. Cette observation est aussi comparable à celle obtenue par la CIN optique, qui montrait une localisation préférentielle tardive (bien que la comparaison reste difficile en raison des conditions uniaxiales de l'essai CIN optique). Enfin l'échantillon altéré six fois présente une localisation précoce de la déformation, associée à de très nombreux événements d'endommagement locaux, comme du broyage de grains, de la micro fracturation et de l'effondrement de pore dans une large bande. L'effet de l'altération identifiée par CIN optique était une forte localisation associée à des événements de micro fracturation. Cet aspect est confirmé à l'aide de la CIN couplé à l'imagerie MEB.

On démontre ici encore une fois l'efficacité la CIN, qui permet de détecter des très faibles déformations locales, ce qui nous amène à aller observer les mécanismes à une échelle appropriée. Cette détection de la déformation de façon localisée est possible par l'optimisation sub voxel, qui permet en partie de s'affranchir des limitations de résolution liées à l'acquisition et au post-traitement des images.

La difficulté principale de ces essais était de trouver un équilibre entre le nombre de palier (et donc le temps total de la campagne) et l'intérêt de ces paliers pour voir de la localisation de la déformation. Pour réaliser cette optimisation il fallait trouver une solution pour anticiper une rupture de l'échantillon et diminuer le taux de chargement en conséquence. La solution utilisée a été l'étude des phases de décharges des échantillons après chaque palier.

Nous avons en effet observé que plus nous nous rapprochions de la rupture plus les courbes de relaxation que l'on observe quelques minutes après le chargement perdaient leur linéarité comme l'illustre la Figure 129. Ces courbes représentent la différence entre la valeur de chargement à un temps T après le chargement et la valeur de chargement maximale appliquée au palier étudié. Cette décharge couple la décharge de l'ensemble du matériel de chargement et de l'échantillon, cependant, on suppose la décharge du dispositif expérimental linéaire car il ne peut que se déformer élastiquement, les variations dans la relaxation pendant le chargement sont donc supposées induites par le matériau.

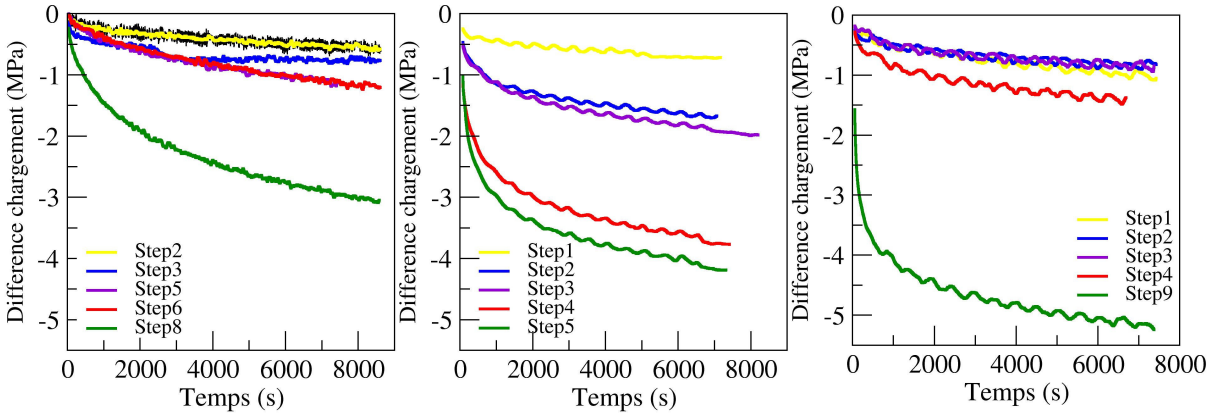


Figure 129: a) courbes de relaxation pour les paliers mesurés en CIN à 5 MPa de confinement pour l'échantillon a) sain, b) altéré 3x et c) altéré 6x

Notre critère a donc été de dire que lorsque l'on observe une courbe dont l'aspect est très fortement non linéaire (courbes vertes de la Figure 129) la rupture a eu lieu et l'essai peut être arrêté.

Nous avons de plus compilé dans le Tableau 14, l'ensemble des valeurs de contrainte déviatorique à la rupture et les modules d'Young effectifs mesurés pour trois méthodes utilisées dans cette thèse. On observe une bonne cohérence dans les valeurs de contrainte à la rupture des échantillons selon les méthodes. Ceci montre que les effets d'échelles n'influencent pas ou peu cette valeur. Les valeurs de modules d'Young à l'état sain sont très homogènes et cohérents entre les méthodes. L'homogénéité des modules de Young pour les états d'altération trois et six cycles sont plus discutables. Les modules obtenus par CIN semblent indiquer des valeurs plus basses que celles obtenues par les essais à faible confinement macroscopique. Les dispersions des différentes valeurs sont importantes mais ne laissent pas envisager de façon évidente des artefacts liés aux différentes méthodes. Les valeurs demeurent cohérentes avec ce que l'on peut attendre d'un carbonate et les trois méthodes montrent la diminution des modules avec l'altération.

Tableau 14: Tableau récapitulatif des valeurs de contrainte déviatorique à la rupture et des modules de Young obtenus par essais triaxiaux standard (a 5 MPa de pression effective), mesures CIN couplée à des essais uniaxiaux et CIN couplée à des essais triaxiaux (à 5 MPa de pression effective)

	Triaxiaux macroscopiques		CIN Optique Uniaxial		CIN Triaxiale microscopique	
	E	**Q***	**E**	**Q***	**E**	**Q***
Sain	*22,0*	*32,4*	*33,2 et 24,5*	*30,8*	*24,5*	*31*
Altéré 3x	*19,2*	*31,6*	*7,0*	*22,5*	*15,3*	*22*
Altéré 6x	*15,1*	*23,8*	*12,5 et 4,7*	*16,7*	*9,5*	*18*

Les résultats en CIN 3D restent cependant à nuancer. En effet nous n’avons pu tester qu’un échantillon par niveau d’altération en CIN 3D; il y a donc un manque de répétitivité ne permettant pas de généraliser ces observations. Par ailleurs, on peut s’étonner de voir les échantillons à trois et six cycles d’altération présenter des régimes de rupture ductile alors que les essais triaxiaux macroscopique à 6 MPa de confinement montraient des régimes de rupture dans le domaine fragile pour les trois états d’altération. Afin de comprendre cette différence de comportement nous avons établi les profils de porosité déduits à partir du niveau de gris moyen de nos échantillons pour chaque position en Z, après calage des histogrammes des niveaux de gris par rapport à l’échantillon altéré trois fois.

Nous avons pris une dizaine de valeurs du niveau de gris dans des macropores à travers tout le volume et une dizaine de valeurs de niveau de gris dans des ciments à travers ce même volume. On établit alors notre échelle de porosité relative allant de 0% de porosité (ciment) à 100% de porosité (macropores) et l’on convertit le niveau de gris moyen de chaque coupe en

porosité le long des 800 coupes composant les volumes. Ce résultat est présenté dans la Figure 130.

La porosité de l'échantillon sain est très faible (12,7%) ce qui s'explique par la présence d'un très grand bioclaste dans l'échantillon. Les échantillons altérés trois et six fois ont des porosités proches à 22,1% et 22,8% respectivement.

La faible porosité de l'échantillon sain est cohérente avec un régime fragile de rupture (valeur de porosité plus faible que pour les essais triaxiaux). Par contre la valeur de porosité des échantillons altérés, qui est inférieure à celle de leurs homologues lors des essais triaxiaux, semble incompatible avec un comportement ductile à la rupture.

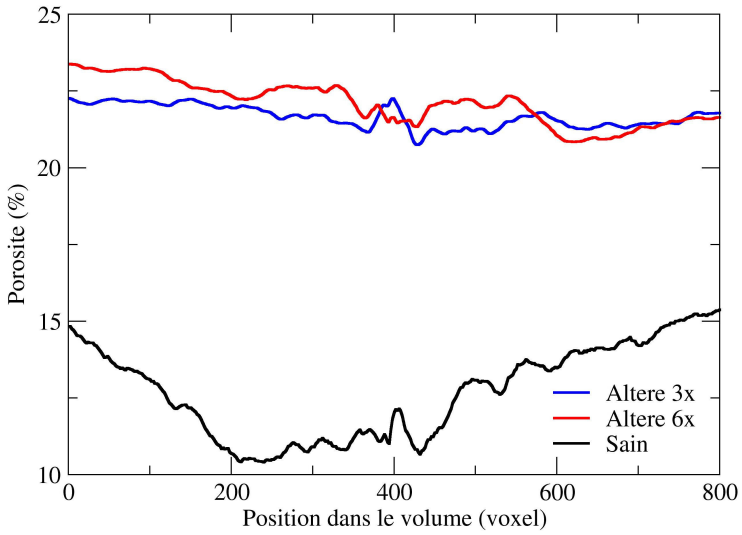


Figure 130 : profils de porosité des trois échantillons

Cette approche d'estimation de la porosité basée sur les niveaux de gris est cependant dangereuse car les zones qui servent de référence à 0 et à 100% de porosité sont celles où le bruit à l'imagerie est fort. Il est plus probable que les différences de comportement des matériaux homologues lors des essais triaxiaux et lors des essais en CIN 3D soient liées à la différence de taille d'échantillon, c'est-à-dire de leur représentativité (VER). On rappelle que le protocole de sélection des échantillons ne permet pas d'assurer une homogénéité microstructurale suffisante pour les sous échantillons utilisés en CIN 3D. Ainsi des hétérogénéités de microstructure qui seraient sans effet global sur des échantillons de taille macroscopique, pourraient s'avérer au contraire prédominantes dans le comportement mécanique des échantillons fils utilisés en CIN 3D. Une solution, serait de pré-scanner à une résolution de 3 µm les échantillons fils avant essai.

VI Conclusion

Ce travail de thèse a porté sur l'étude expérimentale du comportement mécanique du calcaire de Lavoux soumis à une altération chimique homogène. Cette étude repose sur une analyse multi-échelle de la microstructure de la roche, de ses propriétés pétrophysiques et de ses propriétés mécaniques. Ce travail a été motivé par un des grands enjeux environnementaux de ce début de 21eme siècle : la réduction du rejet de CO_2 atmosphérique par la technique du stockage géologique dans les aquifères salins profonds. Ce type de stockage en est encore qu'à ses tout débuts et sa viabilité à long terme doit encore être éprouvée, notamment par l'étude des interactions fluide agressif – roche et leurs conséquences sur l'intégrité du réservoir. C'est dans ce contexte que se place notre étude.

Le travail principalement expérimental que j'ai mené, visait dans un premier temps à déterminer les propriétés mécaniques du carbonate de Lavoux à l'aide d'essais triaxiaux standards. Dans un second temps, ces résultats obtenus à l'échelle macroscopique ont été analysés en se basant sur l'approche micromécanique de mesures de champs complets. Ces derniers sont obtenus à l'aide de la corrélation d'images numériques 2D et 3D, à partir d'observations in-situ, réalisées lors de sollicitations mécaniques. Les observations en 2D ont été réalisées à l'échelle macroscopique et mésoscopique grâce à un dispositif de caméras optiques, sur un banc d'essai uniaxial. L'échelle microscopique a été appréhendée par l'utilisation d'une presse uniaxiale miniaturisée, installée dans l'enceinte d'un microscope à balayage (MEB). Enfin, les observations en 3D ont été réalisées grâce à une cellule triaxiale miniaturisée spécialement développée pour cette thèse, et qui a permis de réaliser des essais de compression en condition triaxiales dans l'enceinte d'un microtomographe de laboratoire. L'ensemble des données et des mesures de propriétés mécaniques ont été analysées comparativement aux observations microstructurales et aux données pétrophysiques de notre roche. Cette troisième partie du travail a consisté en l'analyse microstructurale de la roche avant et après son altération chimique, afin de déterminer les effets de l'altération sur la microstructure les propriétés d'écoulement et les phénomènes de localisation observés à l'aide de la corrélation d'images.

Une grande partie de la thèse a été dédiée à 1) l'optimisation de la sélection des échantillons utilisés pour les essais mécaniques, afin de limiter les hétérogénéités naturelles du carbonate ; 2) la validation et l'optimisation de notre protocole d'altération homogène. L'étude

microstructurale de deux blocs distincts de carbonate de Lavoux avant altération a montré des différences significatives. Ces dernières sont à l'origine de disparités des propriétés pétrophysiques, et notamment d'écoulement, et entre les deux blocs. Le bloc de Lavoux que nous appelons à grains fins (LGF) contient de nombreux fragments d'échinodermes, dont la présence a entraîné la précipitation d'une plus grande quantité de ciments syntaxiaux pendant la diagenèse de la roche. Ces ciments diminuent d'un facteur cinq la perméabilité du Lavoux à grains fins en comparaison avec le Lavoux à gros grains (LGG), issu du deuxième bloc, car ils diminuent la taille des seuils d'entrée des macro pores. L'étude microstructurale et pétrophysique de notre roche après altération a permis de montrer que pour une concentration en acide donnée la porosité augmentait de façon homogène et linéaire avec le nombre de cycles d'altération. L'étude microstructurale nous a aussi permis de mettre en évidence les mécanismes de l'altération (dissolution) au sein de notre carbonate. Contrairement à la porosité, la perméabilité n'a pas présenté de tendance nette à l'augmentation ou la diminution avec l'altération. Nous avons observé à *posteriori* des particules fines (< 5 micromètres) de calcite dans les effluents récoltés après altération de la roche. Pensant que ces particules peuvent être à l'origine d'un phénomène d'obstruction des pores, nous avons développé une méthode de soustraction d'images tomographiques, permettant de les visualiser dans l'espace poral. Nous avons ainsi pu 1) mettre en évidence l'existence *in-situ* de ces particules, 2) confirmer leur mobilité au sein du réseau poreux. Il est difficile de conclure que les variations cycliques de la perméabilité sont uniquement liées à la mobilisation de ces particules, du fait de la faible quantité observée de ces dernières. Cependant, une analyse granulométrique par diffraction laser réalisée sur les effluents a montré qu'une partie de ces particules fines est de taille en dessous de la limite de résolution du microtomographe. Il est possible que de telles particules, probablement issues de la micrite composant les oolithes, puissent s'agglomérer pour aussi contribuer à l'obstruction de la porosité, et donc, aux variations cycliques de perméabilité.

Du point de vue des essais mécaniques macroscopiques, nous avons mené une campagne d'essais triaxiaux à trois états de confinement, 6 MPa, 11 MPa et 16 MPa avec une pression de pore régulée à 1 MPa. Ces campagnes ont permis d'obtenir les courbes de déformations axiales et radiales et d'en tirer les modules élastiques effectifs (module d'Young, module d'incompressibilité et module de cisaillement), ainsi que le coefficient de Poisson. Ces essais triaxiaux ont été menés sur des échantillons sains et altérés trois et six fois, correspondant pour ces derniers à une augmentation de porosité de 1,2 u.p et 2,4 u.p, respectivement. Les

résultats principaux montrent une diminution des modules élastiques avec l'altération, ainsi qu'une évolution plus importante du module de cisaillement, qui sort de la tendance classique pour les carbonates non altérés. L'analyse des courbes de déformation a montré une transition depuis le domaine fragile de rupture (à faible état de confinement) vers un régime ductile de rupture (à 16 MPa de confinement). Cette transition s'opère à des états de confinement intermédiaires décroissants avec l'altération. En se basant sur ces observations de comportement mécanique global et sur celles de la présence de particules fines (attribuées à la micrite composant les oolithes microporeuses) nous avons conclu à une forte probabilité que l'altération affaiblit la cohésion entre les grains oolithiques microporeux de la roche. Ce phénomène favoriserait les mouvements relatifs des oolithes les unes par rapport aux autres, ce qui pourrait expliquer l'anomalie d'évolution du module de cisaillement et la transition accélérée vers un régime ductile de rupture pour les échantillons altérés six fois.

Afin d'étayer les précédentes conclusions nous avons adopté une démarche micromécanique de mesures de champs complets. Nous avons réalisé des essais mécaniques en compression uniaxiale couplés à de l'imagerie optique ou électronique à balayage (MEB), couvrant ainsi différentes échelles d'observation 2D en conditions *in-situ* (pendant le chargement). Les essais ont pu être menés avec le dispositif optique pour des échantillons sains, altéré trois fois et altérés six fois. Avec le dispositif placé dans l'enceinte du MEB, nous avons pu mener des essais sur des échantillons sains et altérés six fois. La technique de la corrélation d'images numériques (CIN) a permis d'identifier des évolutions dans les mécanismes d'accommodation de la déformation selon l'état d'altération. Ainsi, en 2D optique nous avons pu discerner trois comportements. Le matériau sain ne présente que peu de localisation avant la rupture, qui survient brusquement. Le matériau altéré trois fois présente des bandes de déformation sur l'ensemble de la surface observée. Enfin, l'échantillon altéré six fois présente des localisations précoces de déformation qui persistent et se développent jusqu'à la rupture. L'échantillon altéré six fois a aussi montré à l'échelle de la microstructure l'écrasement de grains, comportement caractéristique des régimes compactants de rupture. Cette observation confirme que l'altération affecte fortement la cohésion de la micrite, fragilisant les oolithes et leurs interfaces. La dernière partie de la thèse s'est centrée sur le développement de la cellule triaxiale miniaturisée, de l'ergonomie de l'interface utilisateur et sur son utilisation. Nous avons pu mener des essais actuellement uniques, permettant l'acquisition sous contraintes (hydrostatiques et déviatoriques) de données microtomographiques (imagerie 3D). Les volumes reconstruits correspondant aux phases de chargement axial ont été analysés par la

technique CIN-3D. Les résultats sont très encourageants. En particulier, nous avons pu montrer qu'en dégradant volontairement la résolution des images microtomographiques (souvent très bruitées) en post-traitement on peut adoucir les niveaux de gris locaux. Cette manipulation permet de réduire considérablement les erreurs sur le calcul du champ de déplacement, de les rendre inférieures à celle liées à l'imagerie MEB, voire proches des erreurs liées à l'imagerie optique. Par ailleurs, la stabilité du dispositif de la cellule (mise en place et centrage des échantillons) a permis de s'affranchir de mouvements rigides et d'erreurs de repositionnement lors des acquisitions longues et répétées (parfois espacées de plusieurs jours de manipulation). Les résultats obtenus à 5 MPa de confinement pour des échantillons sain, altéré trois fois et altéré six fois ont permis de visualiser pour la première fois l'initiation et le développement de bandes de type compactant-cisaillant dans des carbonates. Dans le cas de déformations très localisées, comme l'effondrement de pores, ou la microfracturation intragranulaire (dont les échelles sont à la limite de résolution des images acquises), la CIN apparaît comme une méthode de mise en évidence essentielle. Nous avons ainsi pu observer trois comportements différents d'accommodation de la déformation en fonction de l'état d'altération du matériau. Le matériau sain a présenté un régime de rupture fragile, avec le développement d'une surface de rupture en dehors du volume observé. Le matériau altéré trois fois a permis l'observation d'une bande de compaction cisaillante de plusieurs centaines de micromètres d'épaisseur, dans laquelle opèrent la fermeture et l'effondrement de porosité. Enfin, le matériau altéré six fois a présenté de l'endommagement dans une très large bande de compaction cisaillante, dans laquelle nous avons pu observer des mécanismes de microfracturation, d'écrasement et de réorganisation de grains, de fermeture et d'effondrement de porosité L'ensemble de ces résultats tendent à conforter l'idée que l'évolution du module de cisaillement avec l'altération trouve son origine dans la décohésion de la micrite composant les oolithes microporeuses de notre matériau, ce qui va faciliter l'accommodation de la déformation par glissements grain à grain au sein des bandes (de façon comparable à ce qui est observé dans les grès). L'apport de ce nouvel équipement ouvre de très nombreuses perspectives. La démonstration de son fonctionnement et des résultats qu'on peut en espérer ayant été faite, une seconde presse pouvant appliquer 40 MPa de pression de confinement a été usinée et sera prochainement disponible à l'IFPEN. Cette cellule pourrait permettre d'étudier des matériaux plus résistants à la rupture, comme les grès, et dont le comportement compactant apparait plus tardivement que pour les carbonates. Une autre perspective consisterait à mener des expériences de chargement en conditions drainées,

couplées à la mesure de perméabilité pendant le chargement. Ce type d'expérience pourrait permettre de mettre en évidence des effets de barrière ou de drain à l'écoulement pour les différents types de bandes de localisation qui accommodent la déformation des roches réservoirs.

Enfin, nos données peuvent servir de base de départ au développement d'un modèle mécanique couplant la théorie des sphères cimentées et des modèles d'homogénéisation similaires à celui de Bemer *et al.*, (2004), mais aussi en prenant en compte l'altération de la microporosité, afin de pouvoir estimer l'évolution des modules mécaniques pour des roches réservoir carbonatées à microstructure dominante oolithique, comme la couche du Dogger dans le bassin de Paris. Une fois validé, ce type de modèle servirait la modélisation à long terme du comportement mécanique à l'échelle du réservoir de stockage de CO_2

.

Bibliographie

Addis, M. A. (1997). The stress-depletion response of reservoirs. In *SPE annual technical conference and exhibition*.

Allais L., Bornert M., Bretheau T. and Caldemaison D. (1994) Experimental characterizationof the local strain field in a heterogeneous elastoplastic material. *Acta Metallurgica et materialia,* 42, p. 3865–3880.

Amiot, F., Bornert, M., Doumalin, P., Dupré, J. C., Fazzini, M., Orteu, J. J., ... and Wienin, J. S. (2013). Assessment of Digital Image Correlation Measurement Accuracy in the Ultimate Error Regime: Main Results of a Collaborative Benchmark. *Strain*. (in edition)

Andò, E., Hall, S. A., Viggiani, G., Desrues, J., and Bésuelle, P. (2012). Grain-scale experimental investigation of localised deformation in sand: a discrete particle tracking approach. *Acta Geotechnica*, *7*(1), p. 1-13.

André, L., Audigane, P., Azaroual, M., and Menjoz, A. (2007). Numerical modeling of fluid–rock chemical interactions at the supercritical CO_2–liquid interface during CO_2 injection into a carbonate reservoir, the Dogger aquifer (Paris Basin, France). *Energy Conversion and Management*, *48*(6), p.1782-1797.

Anselmetti, F.S., and Eberli, G.P., (1993). Controls on sonic velocity in carbonates: *Pure and Applied Geophysics*, 141(2-4), p. 287-323.

Bachu, S., and Adams, J. J. (2003). Sequestration of CO_2 in geological media in response to climate change: capacity of deep saline aquifers to sequester CO_2 in solution. *Energy Conversion and Management*, *44*(20), p. 3151-3175.

Barbin, V., and Schvoerer, M. (1997). Cathodoluminescence géosciences. *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences-Series IIA-Earth and Planetary Science*, *325*(3), p. 157-169.

Bartko, K., Newhouse, D., Andersen, C., and Treinen, R. J. (1995). The use of CT scanning in the investigation of acid damage to sandstone core. In *SPE Annual Technical Conference and Exhibition*.

Baud, P., Zhu, W., and Wong, T.-f, (2000). Failure mode and weakening effect of water on sandstone: *Journal of Geophysical Research*, 105(B7), p. 16371-16389.

Baud, P., Vajdova, V., and Wong, T. -f. (2006). Shear ‐ enhanced compaction and strain localization: Inelastic deformation and constitutive modeling of four porous sandstones. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth. 111*. (B12).

Baud, P., Vinciguerra, S., David, C., Cavallo, A., Walker, E., and Reuschlé, T. (2009). Compaction and failure in high porosity carbonates: Mechanical data and microstructural observations. In *Rock Physics and Natural Hazards*. p. 869-898.

Bazin, B. (2001). From matrix acidizing to acid fracturing: A laboratory evaluation of acid/rock interactions*: Old Production and Facilities*, 16(1), p. 22–29.

Bemer, E., Vincké, O., and Longuemare, P. (2004). Geomechanical Log Deduced from Porosity and Mineralogical Content. *Science And Technology*, *59*(4), p. 405-426.

Bemer E., Lombard J. M., Daligot J., and Giovannini D., (2008). "Évolution des propriétés mécaniques de roches réservoir sous l'effet d'une altération chimique *Projet ANR GéoCarbone-INJECTIVITE*", *GéoCarbone Injectivité*, Programme ANR : Capture et

stockage du CO_2, Date de démarrage: 01/2006 - Date de fin: 06/2008, Partenaires: IFP (coordinateur)/ BRGM / INPL / LFC/ Geostock / Gaz de France / Total.

Bemer, E., and Lombard, J. M. (2010). From Injectivity to Integrity Studies of CO_2 Geological Storage. *Oil and Gas Science and Technology Revue de l'Institut Français du Pétrole*. *65*(3). p. 445-459.

Bésuelle, P. (2001). Evolution of strain localisation with stress in a sandstone: brittle and semi-brittle regimes. *Physics and Chemistry of the Earth, Part A: Solid Earth and Geodesy*. *26*(1). p. 101-106.

Bornert M**.** (1996). Morphologie microstructurale et comportement mécanique; caractérisations expérimentales, approches par bornes et estimations autocohérentes généralisées. Thèse de Doctorat, Ecole Nationale des Ponts et Chaussées, France.

Bornert, M., Chaix, J. M., Doumalin, P., Dupré, J. C., Fournel, T., Jeulin, D., ... and Moulinec, H. (2004). Mesure tridimensionnelle de champs cinématiques par imagerie volumique pour l'analyse des matériaux et des structures. *Instrumentation, Mesure, Métrologie*. *4*(3-4). p. 43-88.

Bornert, M., Brémand, F., Doumalin, P., Dupré, J. C., Fazzini, M., Grédiac, M., ... and Wattrisse, B. (2009). Assessment of digital image correlation measurement errors: methodology and results. *Experimental mechanics*. 49(3). p.353-370.

Bourcier, M., (2012). Etude multi-échelle des mécanismes de déformation ductiles de polycristaux de chlorure de sodium. Thèse de Doctorat, Ecole Polytechnique, France.

Bourcier, M., Bornert, M., Dimanov, A., Héripré, E., and Raphanel, J. L. (2013). Multiscale experimental investigation of crystal plasticity and grain boundary sliding in synthetic halite using digital image correlation. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*.

Boutéca, M. (1992). Elements of poroelasticity for reservoir engineering. *Rev. IFP*, 47(4), p. 479-490.

Boutéca, M., and Guéguen, Y. (1999). Mechanical Properties of Rocks: Pore Pressure and Scale Effects. *Science And Technology*. *54*(6). p. 703-714.

BRGM, (2007). "Que signifie vraiment le stockage géologique du CO_2", http://www.brgm.fr/brgm/CO_2/publication.htm

Brosse E., Magnier C., and Vincent B., (2005). Modelling Fluid-Rock Interaction Induced by the Percolation of CO_2-Enriched Solutions in Core Samples: the Role of Reactive Surface Area, *Oil and Gas Science and Technology - Rev.IFP*. 60(2). p. 287-305.

Bruck, H. A., McNeill, S. R., Sutton, M. A., and Peters Iii, W. H. (1989). Digital image correlation using Newton-Raphson method of partial differential correction. *Experimental Mechanics. 29*(3). p. 261-267.

Brunauer S., Emmett P. H., and Teller E., (1938).Adsorption of Gases in Multimolecular Layers, *Journal of the American Chemical Society. 60* (2) p 309-319

Casteleyn, L., Robion, P., Collin, P. Y., Menéndez, B., David, C., Desaubliaux, G., and Rigollet, C. (2010). Interrelations of the petrophysical, sedimentological and microstructural properties of the Oolithe Blanche Formation (Bathonian, saline aquifer of the Paris Basin). *Sedimentary Geology. 230*(3). p. 123-138.

Casteleyn, L., Robion, P., David, C., Collin, P. Y., Menéndez, B., Fernandes, N., ... and Rigollet, C. (2011). An integrated study of the petrophysical properties of carbonate

rocks from the “Oolithe Blanche” formation in the Paris Basin. *Tectonophysics*, *503*(1), p.18-33.

Chadwick, A., Arts, R., Eiken, O., Williamson, P., and Williams, G. (2006). Geophysical monitoring of the CO2 plume at Sleipner, North Sea . Springer Netherlands. p. 303-314.

Charalampidou, E. M., Hall, S. A., Stanchits, S., Lewis, H., and Viggiani, G. (2011). Characterization of shear and compaction bands in a porous sandstone deformed under triaxial compression. *Tectonophysics*, *503*(1), p. 8-17.

Charrière, D., (2009). Caractérisation de la sorption de gaz sur les charbons. Application au stockage géologique du dioxyde de carbone dans les veines de charbon. Thèse de Doctorat, université de Toulouse, France.

Chou, L., Garrels, R., and Wollast, R., (1989). Comparative study of the kinetics and mechanisms of dissolution of carbonate minerals *: *Chemical Geology*. 78. p. 269-282.

Chu, T. C., Ranson, W. F., and Sutton, M. A. (1985). Applications of digital-image-correlation techniques to experimental mechanics. *Experimental mechanics*. *25*(3). p. 232-244.

Cilona, A., Baud, P., Tondi, E., Agosta, F., Vinciguerra, S., Rustichelli, A., and Spiers, C. J. (2012). Deformation bands in porous carbonate grainstones: Field and laboratory observations. *Journal of Structural Geology*. *45*. p. 137-157.

Cohen, C. E., Ding, D., Quintard, M., and Bazin, B. (2008). From pore scale to wellbore scale: impact of geometry on wormhole growth in carbonate acidization. *Chemical Engineering Science*. *63*(12). p. 3088-3099.

Daccord, G., and Touboul, E., Lenormand, R. (1989). Carbonate Acidizing: Toward a quantitative model of the wormholing phenomenon: *SPE production engineering*. p. 63-68.

Damkohler, G., (1936). Einflusse der Stromung, Diffusion und des Warmeuberganges auf die Leistung von Reaktionsofen, Z. *Elektrochem*.42. p. 846-862.

Dautriat, J., (2009). Comportement hydromécanique des roches réservoirs sous contraintes : Relations entre évolution de perméabilité et échelles des mécanismes d’endommagement. Thèse de Doctorat, Ecole Polytechnique, France.

Dautriat, J., Gland, N., Dimanov, A., and Raphanel, J., (2011a). Hydromechanical behavior of heterogeneous carbonate rock under proportional triaxial loadings*: Journal of Geophysical Research*. 116(B1). p. B01205

Dautriat, J., Bornert, M., Gland, N., Dimanov, A., and Raphanel, J., (2011b). Localized deformation induced by heterogeneities in porous carbonate analysed by multi-scale digital image correlation: *Tectonophysics.* 503(1-2). p. 100-116.

Dennis , B., (1997). Pores explored. Middle East Well Evaluation. Rev. 19,03-95.

Donaldson, E. C., Baker, B. A., and Carroll, H. B. (1977, October). Particle transport in sandstones. In *SPE Annual Fall Technical Conference and Exhibition*. SPE 6905.

Doumalin,P. (2000). Microextensiométrie Locale par Corrélation d’images Numériques. Thèse de Doctorat, Ecole Polytechnique, France.

Dvorkin, J., Nur, A., and Yin, H. (1994). Effective properties of cemented granular materials. *Mechanics of materials*. *18*(4). p. 351-366.

Egermann P., (2003). Mesures pétrophysiques sur déblais de forage. Thèse de Doctorat, Institut National Polytechnique de Toulouse, France.

Egermann, P.,Bemer, E., and Zinszner, B. (2006). An experimental investigation of the rock properties evolution associated to different levels of CO_2 injection like alteration processes. Paper SCA 2006-34, *Proceeding of the international Symposium of the Society of core Analysts.* Trondheim, Norway. p. 12-16

Feldkamp L.-A, Davis L.-C,. and Kress J. W, (1984). Practical cone-beam algorithm. *Journal of optic society of America*. 1(6), p. 612-619.

Flaathen, T-K., (2009). Étude de l'Interaction Eau-Basaltes Lors d'Injection de CO_2.Thèse de Doctorat, Université de Toulouse, France.

Fleury M., Berne P., Bildstein O., Broseta D., Lagneau V.,Lescanne M., Le Nindre Y.-M., Pironon J., Pichery T., Vidal O.(2007). The Geocarbone Integrity program: Evaluating Sealing Efficiency of Cap-Rocks for CO_2 storage, *poster presented at the First French-German Symposium on Geological Storage of CO_2*. Postdam, Germany.

Fleury, M., and Soualem, J. (2009). Quantitative analysis of diffusional pore coupling from T_2-store T_2 NMR experiments. *Journal of colloid and interface science. 336*(1). p. 250-259.

Fortin J. (2005) Compaction homogène et localisée des roches poreuses: Approche expérimentale et théorique. Thèse de Doctorat, Université Paris VI, France

Fortin, J., Schubnel, A., and Guéguen, Y. (2005). Elastic wave velocities and permeability evolution during compaction of Bleurswiller sandstone. *International journal of rock mechanics and mining sciences. 42*(7). p. 873-889.

Fortin, J., Guéguen, Y., and Schubnel, A. (2007). Effects of pore collapse and grain crushing on ultrasonic velocities and Vp/Vs. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth. 112.* (B8).

Garg A and Shukla P.R., (2009).Coal and energy security for India: Role of carbon dioxide (CO_2) capture and storage (CCS). *Energy.* 34(8). p. 1032-1041.

Géraud, Y., Tournier, B., Surma, F., and Mazerolle, F., (2002). Essais de capillarité et d'évaporation sous tomodensitométrie RX imagerie de la répartition de l'eau. Conséquences sur les flux et la localisation des zones de précipitation des sels*: Journal de Physique IV (Proceedings).* 12(6). p. 347-358.

Ghous, A., Knackstedt, M., Arns, C. H., Sheppard, A., Kumar, M., Sok, R., ... and Pinczewski, W. (2008). 3D Imaging of Reservoir Core at Multiple Scales; Correlations to Petrophysical Properties and Pore Scale Fluid Distributions. *International Petroleum Technology Conference*.

GIEC. Piégeage et stockage géologique du dioxide de carbone - résumé à l'attention des décideurs et résumé technique. *Rapport technique.* GIEC. 2005.

Gourri, A. (1991). Contribution à l'étude de l'influence des conditions de drainage sur les propriétés poroélastiques des roches carbonatées. Thèse de Doctorat, Grenoble 1, France.

Gueguen, Y., and Dienes, J. (1989). Transport properties of rocks from statistics and percolation. *Mathematical geology. 21*(1). p. 1-13.

Gulik, P. S. (1997). Viscosity of carbon dioxide in the liquid phase. *Physica A: Statistical Mechanics and its Applications. 238*(1). p. 81-112.

Hall, S.A., Bornert, M., Lenoir, N., Bésuelle, P., Pannier, Y., Viggiani, G., and Desrues, J., (2010). Discrete and continuum analysis of localised deformation in sand using X-ray μCT and volumetric digital image correlation: *Géotechnique.* 60(5). p. 315-322.

Hammecker, C., Mertz, J.-D., Fischer, C., and Jeannette, D., (1993). A geometrical model for numerical simulation of capillary imbibition in sedimentary rocks: *Transport in Porous Media.* 12(2). p. 125-141.

Hansen, J., Sato, M., Ruedy, R., Lacis, A., and Oinas, V., (2000). Global warming in the twentyfirst century : An alternative scenario. *Proceedings of the National Academy of sciences.* 97. p. 9875-9880,

Hashin, Z. and Shtrikman, S., (1963). A variational approach to the theory of the elastic behaviour of multiphase materials. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids. 11*(2). p.127-140.

Heripre, E. (2006). Méthode de couplage multi-échelles entre simulations numériques polycristallines et mesures de champs pour l'identification des paramètres de lois de comportement et de fissureation des matériaux métalliques (Application à l'étude des alliages TiAl). Thèse de Doctorat, Ecole Polytechnique, Palaiseau, France.

Hild, F., and Roux, S. (2006). Digital image correlation: from displacement measurement to identification of elastic properties–a review. *Strain*. 42(2). p.69-80.

Holloway, S. (2005). Underground sequestration of carbon dioxide—a viable greenhouse gas mitigation option. *Energy. 30*(11-12). p. 2318-2333.

Izgec, O., Demiral, B., Bertin, H., and Akin, S. (2007). CO_2 Injection into Saline Carbonate Aquifer Formations II: Comparison of Numerical Simulations to Experiments. *Transport in Porous Media. 73*(1). p. 57-74.

Jouini, M., Umbhauer, F., Leduc, J. P., and Keskes, N. (2008). Petrophysical Properties Prediction Using 3D Core Scanner Imagery. *SPE Annual Technical Conference and Exhibition*.

Kamath, J. (1992). Evaluation of accuracy of estimating air permeability from mercury-injection data. *SPE Formation evaluation.* 7(4). p. 304-310.

Kestin, J., Khalifa, H. E., and Correia, R. J. (1981). Tables of the dynamic and kinematic viscosity of aqueous NaCl solutions in the temperature range 20-150 C and the pressure range 0.1-35 MPa. *American Chemical Society and the American Institute of Physics for the National Bureau of Standards.*

Law, D., and Bachu, S. (1996). Hydrogeological and numerical analysis of CO_2 disposal in deep aquifers in the Alberta sedimentary basin: *Energy Conversion and Management.* 37(95). p. 1167-1174.

Le Guen, Y., Hellmann, R., Collombet, M., Gratier, J.-P., Brosse, E., and Fran, I., (2007). Enhanced deformation of limestone and sandstone in the presence of high P CO_2 fluids: *Earth.* 112.

Le Guen, Y., (2006). Etude expérimentale du couplage chimie-mécanique lors de la percolation d'un fluide réactif dans des roches sous contrainte , dans le contexte de la séquestration géologique du CO_2.Thèse de Doctorat, Grenoble 1, France.

Lenoir, N., Bornert, M., Desrues, S J., Besuelle, P., Viggiani, G. (2007) Volumetric Digital Image Correlation Applied to X-ray Microtomography Images from Triaxial Compression Tests on Argillaceous Rock. *Strain. 43*(3), p. *193-205.*

Lønøy, A. (2006). Making sense of carbonate pore systems. *AAPG bulletin*, *90*(9), p. 1381-1405.

Louis, L (2003). Anisotropies microstructurales composites dans les roches réservoir : conséquences sur les propriétés élastiques et relation à la déformation. Thèse de Doctorat, Université de Cergy Pontoise, France.

Louis, L., Wong, T. F., and Baud, P. (2007). Imaging strain localization by X-ray radiography and digital image correlation: Deformation bands in Rothbach sandstone. *Journal of structural geology*. 29(1). p. 129-140.

Nguyen, M. T., Bemer, E. T., and Dormieux, L. T. (2011). Micromechanical modeling of carbonate geomechanical properties evolution during acid gas injection. In *45th US Rock Mechanics/Geomechanics Symposium*.

Nguyen, M (2012). Caractérisation géomécanique de la dégradation des roches sous l'effet de l'injection de gaz acide. Thèse de doctorat, Université Paris Est, France.

Noiriel, C., Bernard, D., Gouze, P., and Thibault, X. (2005). Hydraulic Properties and Microgeometry Evolution Accompanying Limestone Dissolution by Acidic Water. *Science And Technology. 60*(1). p. 177-192.

Noiriel, C. (2004). Investigation of porosity and permeability effects from microstructure changes during limestone dissolution. *Geophysical Research Letters. 31*(24). p. 2-5.

Noiriel, C., Luquot, L., Madé, B., Raimbault, L., Gouze, P., and Van Der Lee, J. (2009). Changes in reactive surface area during limestone dissolution: An experimental and modelling study. *Chemical Geology. 265*(1-2). p. 160-170.

Madonna, C., Quintal, B., Frehner, M., Almqvist, B. S., Tisato, N., Pistone, M., ... and Saenger, E. H. (2013). Synchrotron-based X-ray tomographic microscopy for rock physics investigations. *Geophysics.* 78(1). p. D53-D64.

Oelkers, E. H., Gislason, S. R., and Matter, J. (2008). Mineral carbonation of CO_2. *Elements. 4*(5). p. 333-337.

Ostermeier R. M. (2001) Compaction effects on porosity and permeability: deepwater Gulf of Mexico turbidites. *Journal of Petroleum Technology*, February, p. 68-74.

Perrodon, A., Zabek, J (1991). – Paris Basin. - *AAPG Mem*. 51, Interior Cratonic Basins. p. 633-679

Purser, B. H. (1980). Sédimentation et diagenèse des carbonates néritiques récents: les éléments de la sédimentation et de la diagenèse. *Editions Technip. 1*.

Qajar, J., Francois, N., and Arns, C. (2013). Microtomographic Characterization of Dissolution-Induced Local Porosity Changes Including Fines Migration in Carbonate Rock. *SPE Journal. 18*(3). p. 545-562.

Radilla, G., Kacem, M., Lombard, J. M., and Fourar, M. (2010). Transport Properties of Lavoux Limestone at Various Stages of CO_2 -Like Acid-Rock Alteration. *Oil and Gas Science and Technology – Revue de l'Institut Français du Pétrole. 65*(4). p. 557-563.

Rankey, E. C., and Reeder, S. L. (2010). Controls on platform ‑ scale patterns of surface sediments, shallow Holocene platforms, Bahamas. *Sedimentology. 57*(6). p. 1545-1565.

Salençon J. (2005) Mécanique des milieux continus., volume Tome I. Ellipses, Paris, editions de l'ecole polytechnique.

Sarker, M. R. H., and Siddiqui, S. (2009, May). Advances in micro-CT based evaluation of reservoir rocks. *SPE Saudi Arabia Section Technical Symposium*.

Sayegh, S. G., Krause, F. F., Girard, M., and DeBree, C. (1990). Rock/fluid interactions of carbonated brines in a sandstone reservoir: Pembina Cardium, Alberta, Canada. *SPE Formation Evaluation. 5*(4). p. 399-405.

Sok, R. M., Varslot, T., Ghous, A., Latham, S., Sheppard, A. P., and Knackstedt, M. A. (2010). Pore Scale Characterization of Carbonates at Multiple Scales: Integration of Micro-CT, BSEM, FIBSEM. *Petrophysics.* 51(6). p. 379-387.

Sterpenich, J., Sausse, J., Pironon, J., Géhin, A., Hubert, G., Perfetti, E., and Grgic, D. (2009). Experimental ageing of oolitic limestones under CO_2 storage conditions. *Chemical Geology. 265*(1-2). p. 99-112.

Swanson B-f. (1981) A simple correlation between permeability and mercury capillary pressures. *JPT.* p *2498-2504.*

Thomeer, J-h-m., (1960). Introduction of a pore geometrical factor defined by the capillary pressure curve. Trans AIME, March, p 73-77.

Vajdova, V., Baud, P., and Wong T.-f. (2004). Compaction, dilatancy, and failure in porous carbonate rocks: *Journal of Geophysical Research.* 109(B5). p. B05204.

Vajdova, V., Baud, P., Wu, L., and Wong, T.-f. (2012). Micromechanics of inelastic compaction in two allochemical limestones. *Journal of Structural Geology.* 43. p. 100-117.

Valdes, J.R., U, S.D.S., Santamarina, J.C., and Inst, G., (2006). Particle Clogging in Radial Flow : Microscale Mechanisms*: SPE Journal*. p. 193-198.

Valès F. (2008). Modes de déformation et d'endommagement de roches argileuses profondes sous sollicitations hydro-mécaniques, Thèse de Doctorat, Ecole Polytechnique, Palaiseau, France

Vanorio, T., Scotellaro, C., and Mavko, G. (2008). The effect of chemical and physical processes on the acoustic properties of carbonate rocks. *The Leading Edge. 27*(8). p. 1040-1048.

Vincent, B., Fleury, M., Santerre, Y., and Brigaud, B. (2011). NMR relaxation of neritic carbonates: An integrated petrophysical and petrographical approach. *Journal of Applied Geophysics. 74*(1). p. 38-58.

Wang, L. L., Bornert, M., Chanchole, S., Yang, D. S., Héripré, E., Tanguy, A., & Caldemaison, D. (2013). Micro-scale experimental investigation of the swelling anisotropy of the Callovo-Oxfordian argillaceous rock. *Clay Minerals. 48*(2). p.391-402.

Washburn, E. W. (1921). Note on a method of determining the distribution of pore sizes in a porous material. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America. 7*(4). p.115.

Weger, R.J., Eberli, G.P., Baechle, G.T., Massaferro, J.L., and Sun, Y.-F., (2009). Quantification of pore structure and its effect on sonic velocity and permeability in carbonates: *AAPG Bulletin.* 93(10). p. 1297-1317.

Wong, T.-F., David, C., and Zhu, W., (1997). The transition from brittle faulting to cataclastic flow in porous sandstones: Mechanical deformation*: Journal of Geophysical Research.* 102(B2). p. 3009-3025.

Wong, T. F., and Baud, P. (2012). The brittle-ductile transition in porous rock: A review. *Journal of Structural Geology*. 44. p 25-53.

Yale D. P., Crawford B. R., (1998). Plasticity and permeability in carbonates: Dependancy on stress path and porosity. *SPE/ISRM*. 47582. p. 485-494.

Yang, D., Bornert, M., Chanchole, S., Wang, L., Valli, P., and Gatmiri, B. (2010a). Experimental investigation of the delayed behavior of unsaturated argillaceous rocks by means of digital image correlation techniques. *Applied Clay Science. 54*(1). p. 53-62.

Yang, D., Bornert, M., Gharbi, H., Valli, P., and Wang, L. L. (2010b). Optimized optical setup for DIC in rock mechanics. *EPJ Web of Conferences.* p.6.

Yang, D. S., Bornert, M., Chanchole, S., Gharbi, H., Valli, P., and Gatmiri, B. (2012). Dependence of elastic properties of argillaceous rocks on moisture content investigated with optical full-field strain measurement techniques. International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences. *53*. p. 45-55.

Yavuz, H., Demirdag, S., and Caran, S. (2010). Thermal effect on the physical properties of carbonate rocks. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences. 47*(1). p.94-103.

Youssef, S., Rosenberg, E., Gland, N., Békri, S., and Vizika, O., (2007). Quantitative 3D Characterisation of the Pore Space of Real Rocks: Improved μ-CT Resolution and Pore Extraction Methodology, *in Society of Core Analysts*, p. 1-13.

Youssef, S., Han, M., Bauer, D., Rosenberg, E., Bekri, S., Fleury, M., and Vizika, O. (2008). High resolution μCT combined to numerical models to assess electrical properties of bimodal carbonates. *Abu Dhabi, UAE, 29*.

Zhu, W and Wong, T.-f, (1997a). The transition from brittle faulting to cataclastic flow: Permeability evolution: *Journal of Geophysical Research:solid earth*. *102*(B2). 3027-3041.

Zhu, W. and Wong, T.-f, (1997b). Shear-enhanced compaction in sandstone under nominally dry and water saturated conditions. *International Journal of Rock Mechanics and Mining*. *34*(364). p. 3-4.

Zhu, W., Baud, P., and Wong, T. F. (2010). Micromechanics of cataclastic pore collapse in limestone. *Journal of Geophysical Research. 115*(B4).

Zhu, W., Baud, P., Vinciguerra, S., and Wong, T. f. (2011). Micromechanics of brittle faulting and cataclastic flow in Alban Hills tuff. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth. 116*(B6).

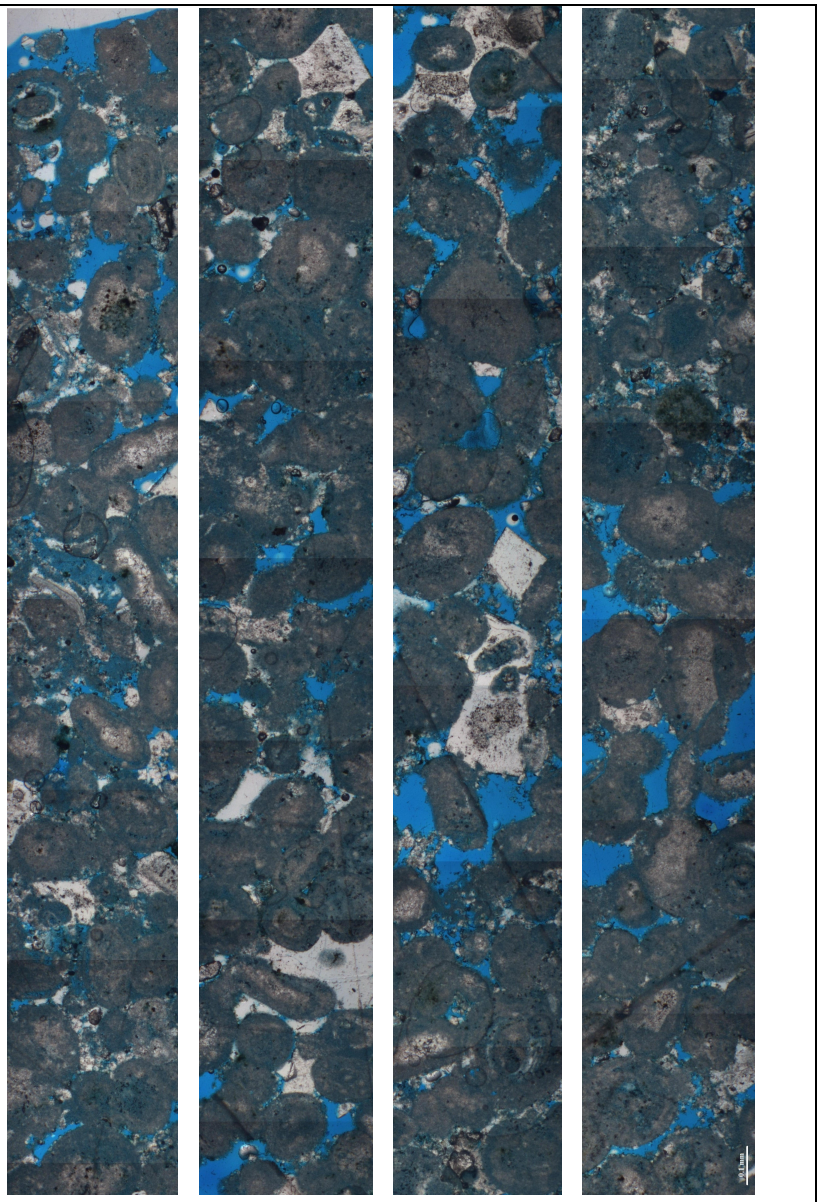
Zinszner, B., and Pellerin, F. M. (2007). A geoscientist's guide to petrophysics. *Paris: Editions Technip*.

Zwart, B. R., Currie, P., de Boer, J., Vafaie Naeini, A., and Schotting, R. (2008). Experimental and Theoretical Investigation of Clogging Processes Near Production Wells Using X Ray Tomography. *SPE Annual Technical Conference and Exhibition*.

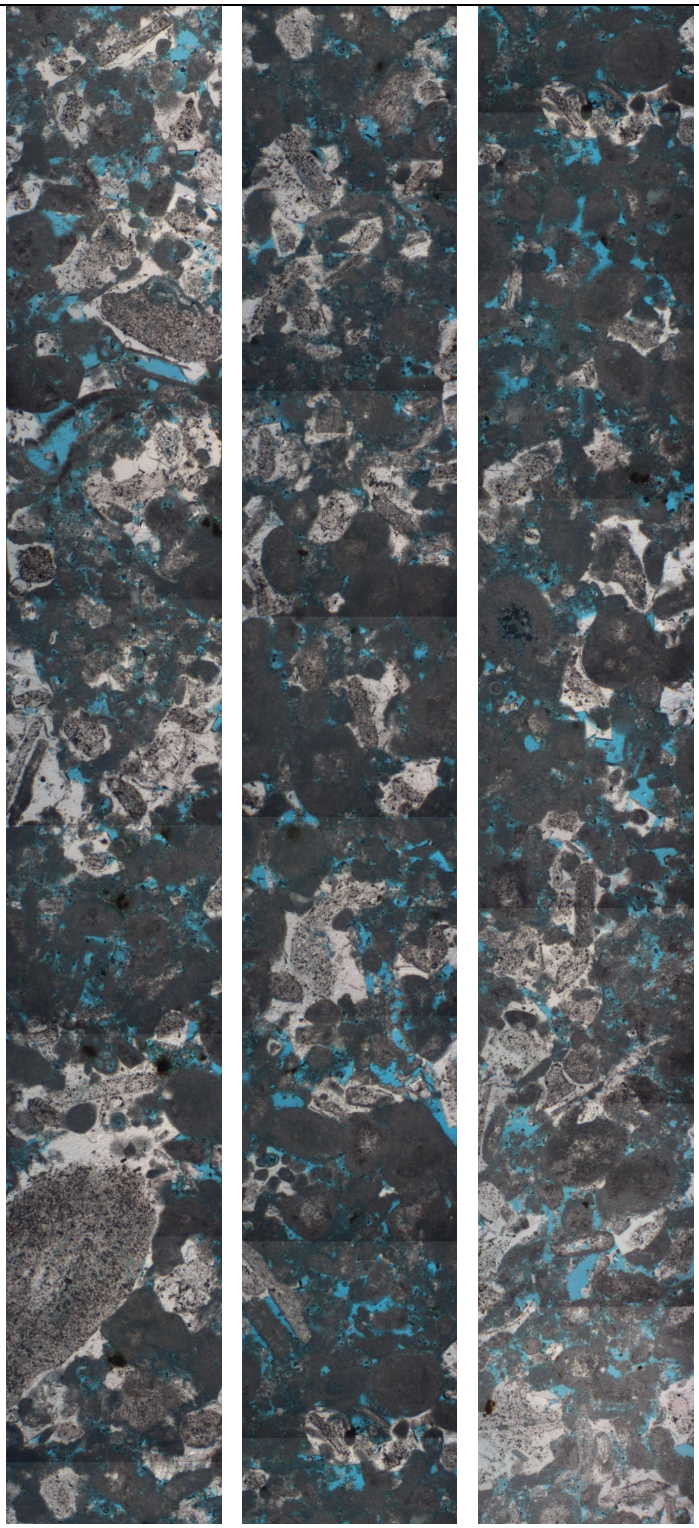
Annexe 1

Présentation de deux panoramas issus d'observation en lame mince à grossissement x20 pour LGG et LGF

Les panoramas se lisent de haut en bas et de gauche à droite pour reproduire la coupe à travers la lame complète.



LGG



LGF

Annexe 2

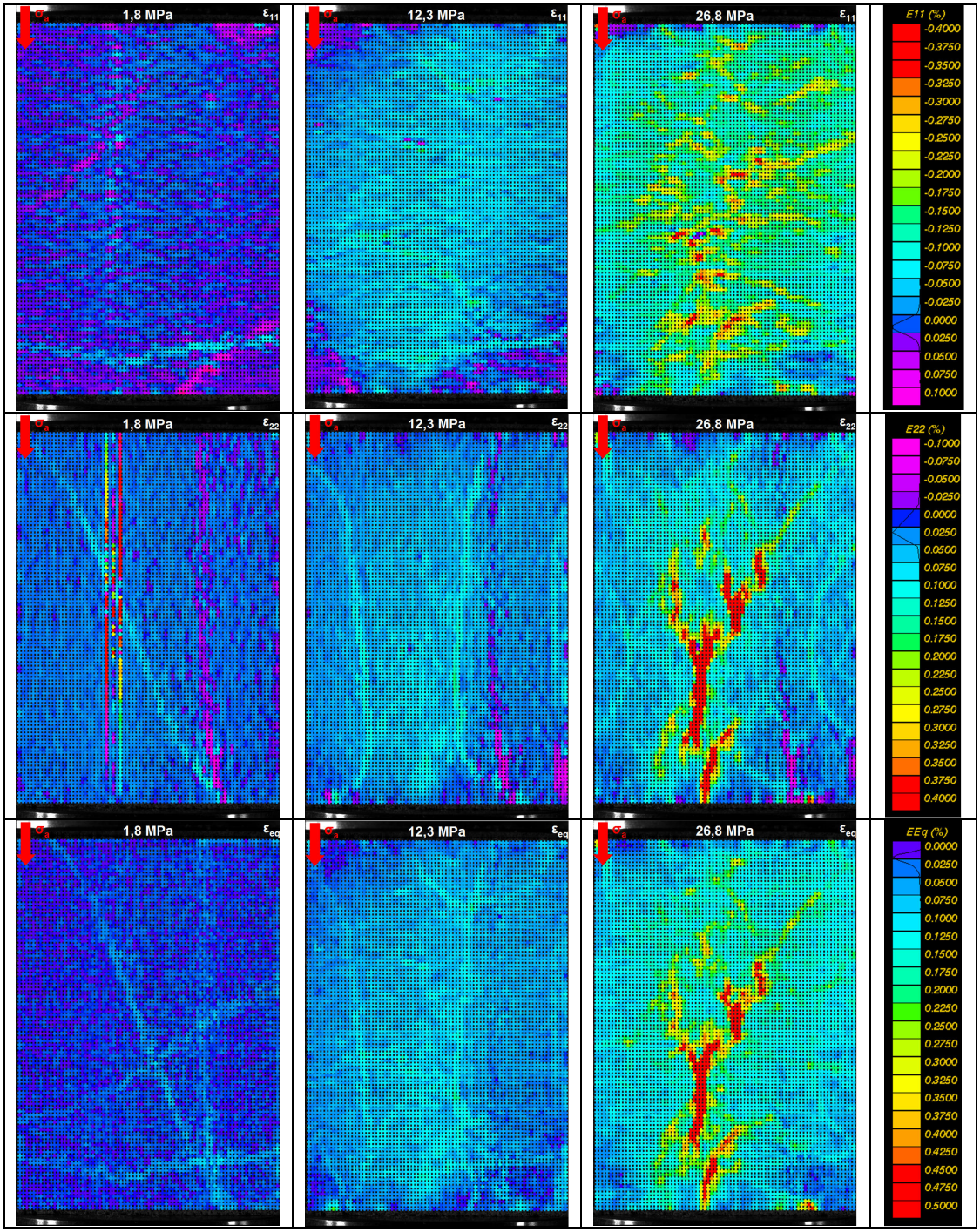
Détail des perméabilités initiales obtenues pour les échantillons de LGG et LGF

Nom	*Perméabilité initiale*	*Porosité scanner*
LGG_7	**86,5**	**23,0**
LGG_9	**96,5**	**22,4**
LGG_10	**137,1**	**22,9**
LGG_18	**110,8**	**22,5**
LGG_1	**94,0**	**24,0**
LGG_2	**108,0**	**23,7**

Nom	*Perméabilité initiale*	*Porosité scanner*
J9_10	**16,3**	**24,0**
J9_12	**17,5**	**23,2**
J9_21	**18,0**	**24,2**
J9_17	**17,1**	**24,1**

Annexe 3

Carte de déformation dans les direction ε_{11} et ε_{22} ainsi que la carte des déformatiosn équivalentes εeq pour l'échantillon LGF_A à 1,8 MPa, 12,3 MPa et 26,8 MPa de chargement. La rupture a eu lieu à 30,6 MPa de contrainte axiale. Tout comme pour l'échantillon LGF_B on n'observe peu à peas de localisation avant quelques MPa de la rupture.



Annexe 4

Publication 1

Proceeding – SCA2012-32 – préparé pour présentation à la conférence : 'Internal Symposium of the Society of Core Analysts' – Aberdeen – Royaumes Unis – 27 au 30 Aout 2012

Titre :
Mechanical behavior of an altered reservoir limestone: multiscale and core analysis approaches

Mechanical behavior of an altered reservoir limestone: multi-scale and core analysis approaches

Louis Zinsmeister[1-2], Jérémie Dautriat[1], Nicolas Gland[1], Alexandre Dimanov[2] Michel Bornert[3] and Jean Raphanel[2].

(1) IFP Energies Nouvelles – 1 & 4 avenue du Bois-Préau – 92852 Rueil-Malmaison Cedex - France

(2) Laboratoire de Mécanique des Solides –UMR CNRS 7649 - Ecole Polytechnique – 91128 Palaiseau Cedex - France

(3) Laboratoire Navier – UMR CNRS 8205 - Ecole des Ponts ParisTech - 6 & 8 avenue Blaise Pascal – 77455 Champs sur Marne Cedex 2 - France

This paper was prepared for presentation at the International Symposium of the Society of Core Analysts held in Scotland, UK, 27-30 August, 2012

ABSTRACT

The success of CO_2 geological storage requires the insurance long term injectivity and integrity over the site. In contrary to conventional hydrocarbon gas injection, CO_2 injection may induce geochemical reactions between the reactive brine and the host rock, leading to modifications of petrophysical and geomechanical properties. This study aims to relate the evolutions of these properties to the chemically-induced microstructural evolution by multi-scale characterization. Classical laboratory procedures of co-injecting supercritical CO_2 and brine or brine saturated with CO_2 lead to wormholing and heterogeneous dissolution patterns, which makes difficult the measurements at the plug scale. In the present study carbonate samples have been subjected to Retarded Acid Treatments (RAT). This protocol mimics the effects of long-term alteration mechanisms, by insuring a homogeneous dissolution pattern throughout the samples. Porosity, permeability and mechanical properties are measured and compared between intact and successively altered samples. The effects of alteration on these properties are discussed in term of microstructural evolutions, based on classical core analysis (NMR and Hg-Porosimetry), thin-sections observations and Scanning Electron Microscopy (SEM). The evolutions of mechanical properties are studied by conventional triaxial tests, which show a weakening of the samples with the alteration. This weakening may be first related to the increase of the sample porosity. However, other microstructural changes may be involved as well. Therefore a quantitative and continuous micro-mechanical investigation is needed to define more precisely the history and the localization of the deformation during compression. Full-field measurements techniques combining in-situ observations and Digital Image Correlation (DIC) are the best suited techniques for this purpose. Sequences of optical and SEM images have been acquired on respectively macroscopic and centimetric samples during uniaxial compressive loading and treated by DIC. Homogeneous deformation is observed on intact samples while it is localized in altered ones. The integrated and multi-scale approach proposed in this paper, combining classical petrophysical and original geomechanical measurements, will contribute to the development of micro-mechanically based constitutive laws for implementation in geomechanical reactive transport simulators.

INTRODUCTION

CO_2 injection in deep aquifer is a promising technique developed to reduce the greenhouse effect, but it may affect the reservoir integrity and cause leakage. Dissolution is one of the processes induced by the CO_2 injection; dissolution patterns are different with the distance to the injection well [1]. Next to the well, heterogeneous alteration is observed and numerals

studies have been made to determine its impact on mechanical [2] and flow [3,4] properties evolutions. This paper focuses on the homogeneous alteration case. First studies using a retarded acid treatment (RAT) in order to mimic a homogeneous alteration [5,6] show a stronger decrease of the elastic moduli than expected from classical poromechanical models [7,8]. Dautriat *et al.* [9] applied Digital Image Correlation (DIC) method on heterogeneous intact Estaillades limestone and successfully determined specific micromechanical behaviors like micro-crack opening. Based on these different methods, our study uses the RAT protocol and integrates most of the classical petrophysical methods, applied at macro, meso and micro scales in order to characterize the effects of alteration. The study is completed by DIC of optical and Scanning Electron Microscopy (SEM) imaging during uniaxial loading.

INTACT ROCK CHARACTERIZATION

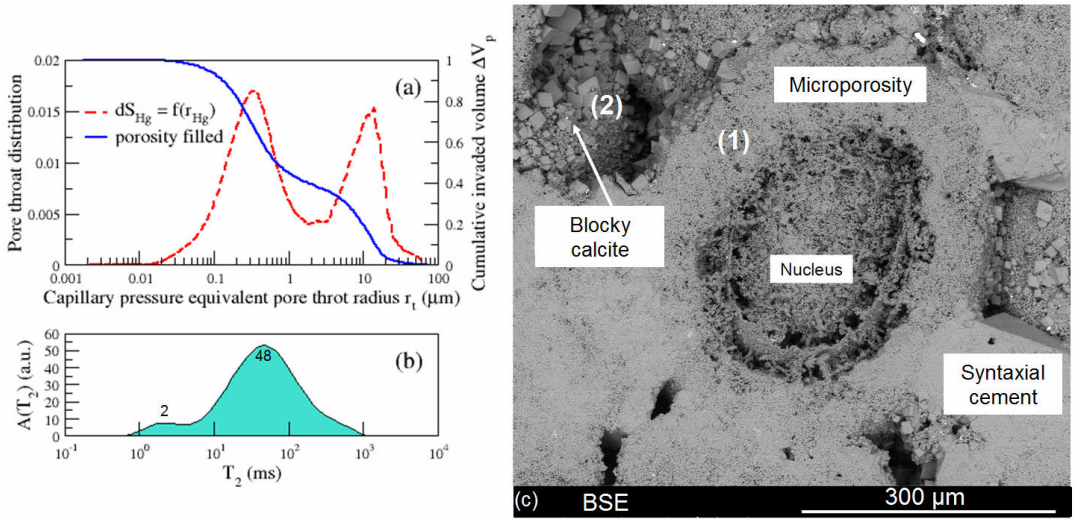
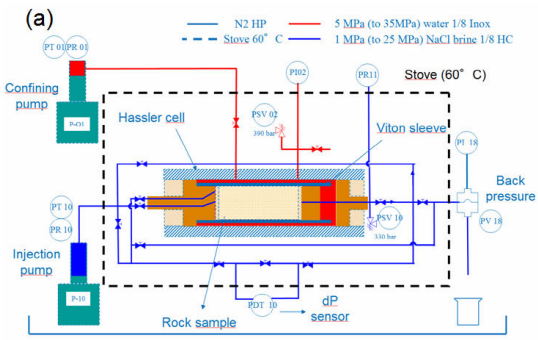


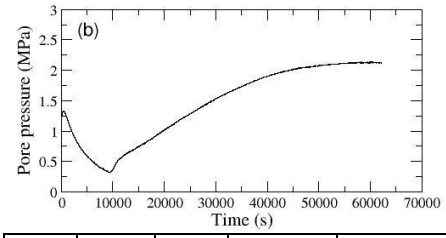
Figure 1: (a) Pore throats distribution obtained by Hg-porosimetry, (b) NMR T2 relaxation times distribution and (c) microstructures of the Lavoux limestone imaged by SEM : (1) indicates the microporosity within the oolites, (2) indicates the inter-grains macroporosity

The studied rock comes from the Lavoux limestone quarry located in the vicinity of Poitiers in France. This material is a nearly pure calcite oolitic limestone formed in a strong and continuous rolling flow environment. Three main structures are observed by SEM (Fig. 1(c)), microporous and rounded oolites with an average size of 500 µm, large syntaxial cements and small rhombohedra calcite cement at the boundaries of the oolites. In order to describe the porous network, classical petrophysical measurements have been performed, such as Scanner Tomography, High Pressure Mercury Injection (HPMI), Nuclear Magnetic Resonance (NMR) and porosity estimation by dry and wet weights. The porosity is bimodal (as shown by NMR T2 distribution in Fig. 1(b)) with a large macroporosity (inter-grains) and a smaller microporosity within the oolites (intra-grains) having mean pore throats radii of 11 µm and 0.3 µm, respectively (HPMI in Fig. 1(a)). The porosity measured by dry and wet weights ranges from 20% to 26% for a mean value of 24%. For alteration and mechanical tests, 80 mm x 40 mm cylindrical core samples have been selected with respect to a mean porosity close to 24% ±0.5%, and a homogeneous porosity along the sample length, as revealed by CT-scanner imaging. In spite of this selection, the permeability ranges from 85 mD to 140 mD for seven samples.

HOMOGENEOUS ALTERATION

Protocol





P_{conf} (MPa)	P_{pore} (MPa)	Temp. (°C)	Alteration time	Saturated fluid
6	1	60	~ 12 h	brine NaCl 5 g/L

Figure 2: (a) Upgraded experimental set-up for alteration and brine permeability measurements, (b) pore pressure evolution during the alteration. The experimental conditions are reported in the table

The sample alteration technique is based on RAT following the protocol described by Egermann *et al.* [5], we recall that RAT insures a homogeneous alteration at the difference of CO_2-brine injection [3,4]. The experimental set-up (Fig. 2(a)) is composed of a confining Hassler cell, which allows the application of a hydrostatic stress on the sample, which is isolated of the confining medium by a core sleeve. The intact state permeability is measured at a confining pressure Pc = 6 MPa. Afterwards, the brine is flushed out by the injection of three pore volumes (V_p) of an initially inactive acid. The sample is then placed under undrained conditions and the temperature is increased up to 60°C to activate the acid. When the pore pressure reaches a plateau (usually after one night, see Fig. 2(a)), the equilibrium between reactive fluid and carbonate is assumed, and the core is flushed by fresh brine. Effluents are collected and the particles size distribution is measured by laser diffraction. The complete protocol is repeated until a chosen porosity increase is reached. Permeability is measured between each RAT. Finally, the dried sample is imaged by medical scanner, to check the homogeneity of the alteration and estimate the porosity increase. The experimental set-up has been upgraded to allow the measurement of the permeability in opposite directions, to evaluate the impact of potential fine particles mobilization in the porous network.

Petrophysical and Microstructural Evolutions

Petrophysical Changes

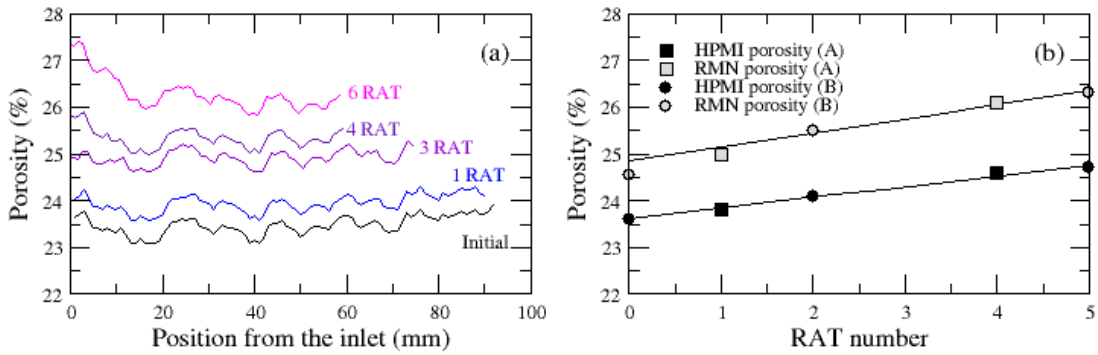


Figure 3: (a) Typical evolution of the porosity profile of sample A subjected to successive RATs measured by X-ray scanner, (b) porosity evolution with RAT number obtained by MNR and HPMI on two samples A and B

Fig. 3(a) presents the porosity profiles obtained from CT-scanner analyses performed at successive RATs on sample A. After each cycle, a slice of sample is cut for HPMI and MNR analyses and for thin sections preparation. The evolution of profiles shows a conservation of initial local heterogeneity of porosity and a constant increase of mean porosity for each RAT. Only the inlet part appears more heterogeneously altered, probably due to an exceeding concentration of acid in the piston groove. To avoid a potential effect of this more altered

region, 5 mm of material are removed when preparing samples for mechanical tests. Fig. 3(b) shows the evolution of porosity measured by HPMI and MNR on two different samples (A and B). The discrepancy between the porosity values obtained by the two methods is a well known phenomenon. It is explained by a microstructural crushing at High Pressure of Hg injection, which can lead to a closure of smaller pores. Nevertheless, the two methods show the same linear porosity increase of 0.2 p.u/RAT with NMR and HPMI (on 15 mm x 17 mm core) for a 10% diluted acid.

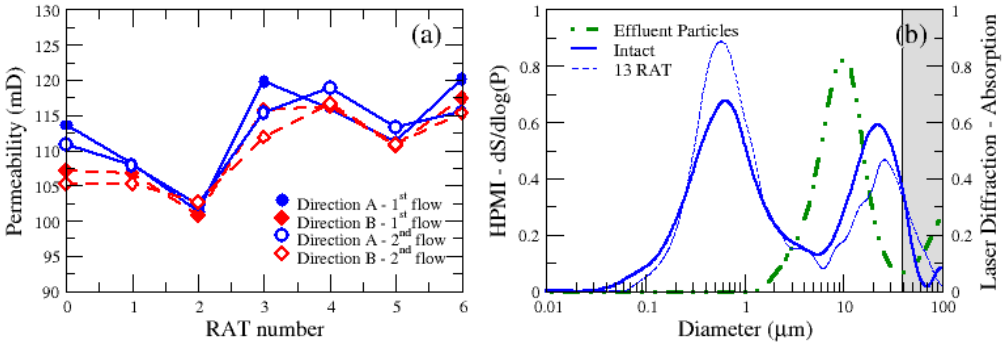
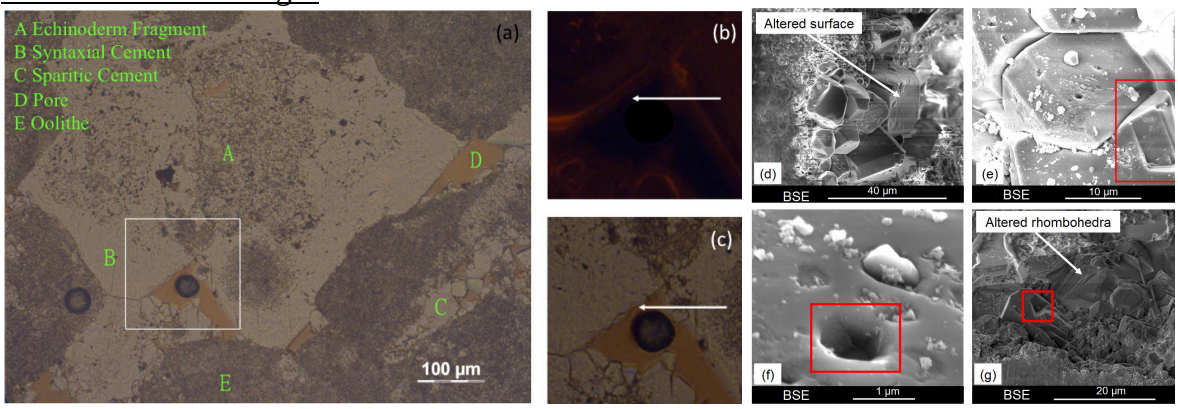


Figure 4 : (a) Permeability evolution with the alteration and for two directions of measurement (b) outgoing particles and pore throat evolution after 13 cycles of alteration obtained by HPMI and laser diffraction

The permeability evolution is more complex, as shown in Fig. 4(a). It is cyclic with successive phases of increase and reduction, without evidence of an important impact of the measurement direction for a same alteration state. As shown in Fig. 4(b), an increase of the proportion of micropore throats and a spreading of the macropore throats distribution are observed, which suggest a permeability increase. The superimposed curve of effluent particles in Fig. 4(b) evidences however the existence of outgoing particles, which diameters range from a few micrometers (micrograins of calcite constitutive of oolites) to a few tens of micrometers (macropore throats sizes). We cannot exclude that larger mobilized particles remain stuck in the porosity, which will decrease the permeability.

Microstructural Changes



Figur e 5 : (a) Thin section of the Lavoux limestone after 13 RATs, focus on alteration patterns on the syntaxial cement surface imaged by (b) cathodoluminescence and (c) white light and SEM observations of corrosion pits at the calcite rhomobohedra surface obtained after (d,e,f) 2 RATs and (g) 13 RATs

The impacts of alteration on the microstructure have been investigated by thin sections and SEM imaging. For this purpose, a high number (13) of RATs has been performed on a sample to enhance the alteration effect. Corrosion pits on calcite rhombohedra are observed (Fig.

5(d,e) and dissolution patterns are observed on syntaxial cement under white light and cathodoluminescence (Fig. 5(a,b,c)). Some cements show the imprint of missing imbricated crystals, possibly due to a loss of cohesion between cement grains induced by alteration (Fig. 5(e,f,g)). These torn out particles are probably responsible for clogging of macropore throats. The 13 RATs sample shows a pyramidal dissolution pattern of small calcite cements (Fig. 5(g)), which can be explained by the alteration of crystalline planes of the rhombohedra.

Because of post-mortem imaging, we are only able to identify the micromechanisms of dissolution on well-defined structures such as cements. Nevertheless, these local mechanisms are probably not the only cause of the mean porosity increase and an effect of alteration on oolites is also expected. A comparative analysis of a sample imaged by 3D micro-tomography at successive RATs is in progress to estimate the increase of porosity related to microporous oolites alteration.

Mechanical Behavior and Weakening Effect

Confining Pressure (MPa)	6	11	16
X-ray porosity (%)	24.4	24.1	24.1
E (GPa)	17.8	21.8	22.1
ν	0.25	0.23	0.2
Effective failure (MPa)	32.4	37.8	38.0

	Intact	Altered 3x
X-ray porosity (%)	24.3	24.4
E (GPa)	23	12
ν	0.2	0.19
UCS (MPa)	33.8	18.3

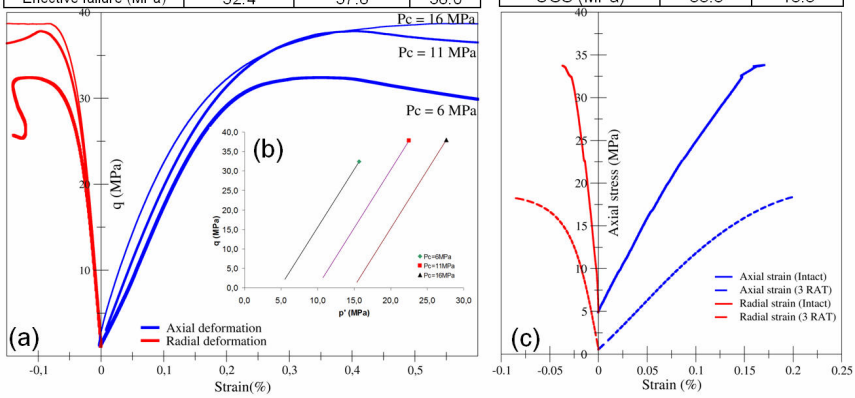


Figure 6 : (a) Stress-strain curves obtained on intact samples at different confining pressures and (b) associated critical stress reported in the p'-q (mean effective pressure-deviatoric stress) diagram, (c) stress-strain curves obtained on intact and 3 RATs samples loaded uniaxially

During triaxial tests, the axial force, the pore and the confining pressure are monitored. Axial and radial deformations are measured by strain gauges glued on the sample circumference. Sample is saturated with mineral oil and the pore pressure maintained constant at Pp = 1 MPa. A first drained triaxial loading is performed at low confining pressure (Pc = 2 MPa) to determine the elastic moduli. The mean Young's modulus and Poisson's ratio of the Lavoux limestone are respectively 20.6 GPa and 0.24. The sample is then hydrostatically loaded up to a chosen pressure. Once this pressure is reached, the axial stress is increased until sample failure. Three confining pressures (6 MPa, 11 MPa and 16 MPa) are used in order to determine the brittle regime limit (Fig. 6(a)). At the lower confining pressures a peak stress is observed (brittle regime) while at Pc = 16 MPa, a transition regime involving shear enhanced compaction mechanisms is reached [10].

Fig. 6(b) shows the strain evolutions of intact and after 3 RATs wet samples under simple compression. Despite a same porosity for the two samples, we observe a strong weakening of the rock, resulting in a decrease of Young's modulus from 23.6 to 11.8 GPa and of the Uniaxial Compressive Strength (UCS) from 33.8 to 18.3 MPa. This observation indicates that the increase in porosity is not the unique parameter governing the mechanical behavior of the altered material. The loss of solid matrix (micrite and cement) cohesion may play a part.

DIGITAL IMAGE CORRELATION

Methodology of Digital Image Correlation

In this study, the full-field measurements consist in the acquisition of pictures of the surface of a sample subjected to simple compressive loading. The DIC method allows the determination of the displacement field and the calculation of the associated strain field at successive stages of loading [11, 12]. For this purpose, a reference 'undeformed' image is discretized into a grid of regularly spaced points. A correlation domain *D* is devoted to each grid point of index *i*. The DIC procedure consists in identifying the similar domain of the 'deformed' images, homologous to the ones of the reference image, by minimizing a correlation function *C* [11]:

$$C(\phi_0) = 1 - \frac{\sum_{i\in D}\left(f(X_i) - \overline{f_D}\right)\cdot\left(g(x_i) - \overline{g_D}\right)}{\sqrt{\sum_{i\in D}\left(f(X_i) - \overline{f_D}\right)^2}\cdot\sqrt{\sum_{i\in D}\left(g(x_i) - \overline{g_D}\right)^2}} \quad (1)$$

where X_i and x_i are the coordinates of similar points in the reference image and in the deformed one, which are associated by an approximation of the mechanical transformation ϕ_0, minimizing *C*. $f(X_i)$ and $g(x_i)$ are respectively the grey levels of point *i* in the reference image and in the deformed image; f_D and g_D are respectively the averages of the grey levels on the domain *D* and on the homologous domain transformed by ϕ_0. A subpixel resolution on the displacement is obtained by a bilinear interpolation of the grey level in each domain. The coordinates of the homologous domain centers provide the displacement field, which allows the computation of in-plane strain components (ε_{11}, ε_{22}, ε_{12}) by a contour integration on a chosen area. The size of this area ranges from the complete studied grid, providing global strain measurements, to nearest neighbour points of each point of the grid providing a local strain. The magnitude of the component of this strain field may be represented by colours levels superimposed on the microstructure images. One may also plot the equivalent strain Von Mises expressed by (2) under the assumption of axisymmetry:

$$\varepsilon_{eq} = \frac{2}{3}\sqrt{(\varepsilon_{11} - \varepsilon_{22})^2 + 4(\varepsilon_{12})^2} \quad (2)$$

Experimental set-up

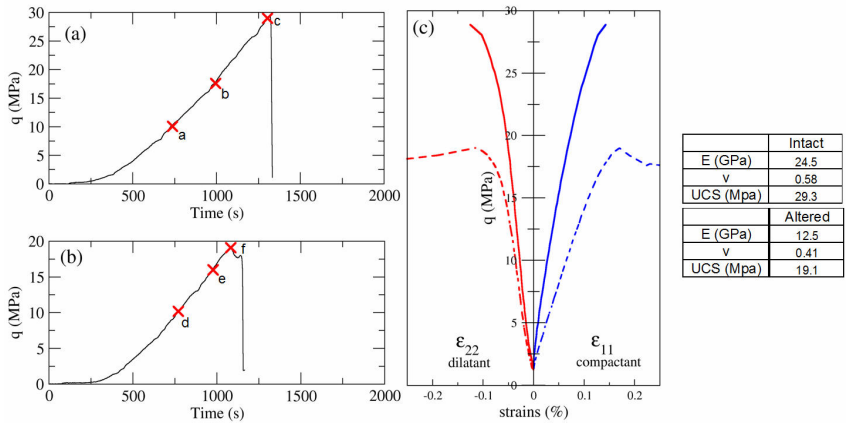
The DIC study has been performed at two scales on macroscopic samples imaged by optical devices and high resolution camera and on small samples imaged by SEM.

The macroscopic compression tests are performed on an uniaxial loading system controlled in displacement. Cylindrical samples of 37 mm high and 36 mm in diameter are machined in order to produce two opposite flattened 25 mm wide surfaces. The applied load and displacement are measured by a force sensor and a LVDT. A constant displacement rate of 1 µm/s is imposed until sample failure. During loading, images of one flattened surface are taken at constant time intervals by a high resolution CCD camera (4872x3248 ~16 Mpixel) covering the whole surface (with pixel size ~7 µm). Black and white painting sprays are applied to enhance local contrast and optimize the DIC efficiency.

Small parallelepiped samples (14 mm x 7 mm) are tested inside a SEM equipped with a simple compression rig (maximum load 5 kN). Displacement is controlled at a rate of ~1 µm/s. The SEM image acquisition lasts several minutes, consequently the loading is performed in a stepwise manner. The natural contrast of the material is sufficient for DIC, but the contrast and brightness must be optimized before each acquisition to spread the grey level histogram over the full 16 bit range. The magnification varies from x60 to x80, corresponding to imaged

surfaces of 2.1mm x 1.8mm (5 µm of resolution) and 1.6 mm x 1.4 mm (3.9 µm of resolution).

Large Scale Effects Of The Alteration



	Intact
E (GPa)	24.5
v	0.58
UCS (Mpa)	29.3

	Altered
E (GPa)	12.5
v	0.41
UCS (Mpa)	19.1

Figure 7: Loading curves of (a) intact and (b) 6 RATs macroscopic samples and (c) Stress-strain curves inferred from DIC calculation on the whole surface of the samples. Elastic Moduli and USC are reported in the table

Fig. 7(a,b) presents time-load curves with larger UCS for unaltered than altered sample, consistently with previous uniaxial loading experiments. Red crosses on the curves correspond to the images presented Fig. 8 and 9. Fig. 7(c) is obtained by DIC computing the strain on the all observation surface. From this analysis, Young's moduli are comparable with those previously obtained by classical uniaxial tests, but the Poisson's ratios are not. The latter discrepancy may be explained by a global displacement of the sample toward the camera (due to sample sliding) which is abusively interpreted as dilation effect and results in an overestimation of the radial deformation.

Optical Results

Fig. 8 presents the in-plane strains ε_{11} and ε_{22} for intact and altered samples at three different stages of loading. At 10.1 MPa, the intact sample (ε_{11} ~ -0.02%) shows a small mean deformation (ε_{11} ~ -0.02%) expressed by a light blue color. At 17.6 MPa, equivalent to ε_{11} ~ -0.05%, some spots presents higher deformation levels, seemingly at random. Finally at 29.0 MPa, tensile cracks develop linking the previously noticed spots. Conversely, the altered samples at similar stress level (10.2 MPa) present a larger mean strain (ε_{11} ~ -0.06%) represented by deep blue hue, traducing a more compressive behavior. At 16.0 MPa (ε_{11} ~ -0.12%), the top right area exhibits larger strain, characterized by a strong localization, initiating the final failure pattern at 19.1 MPa.

In conclusion, the two kinds of samples present contrasting deformation patterns. The intact one develops progressively a interconnected network of shear bands leading to the development of diffuse micro damages until the peak stress. Conversely the altered one presents a higher mean compressibility, but also very strong localization in few areas which trigger local instabilities. The reason of these localizations remains unclear at this scale and requires micromechanical investigations at the scale of microstructure, as shown in the next section.

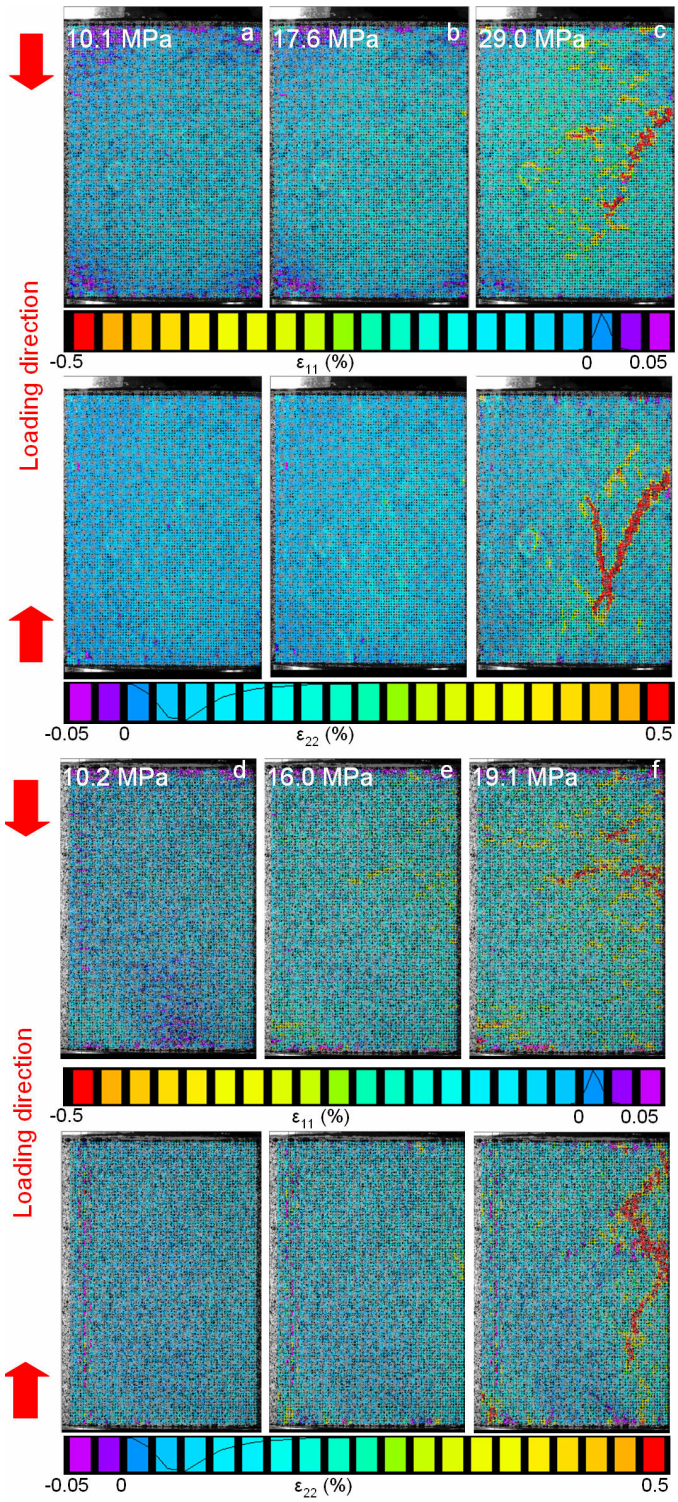


Figure 8 : In-plane strain components ε_{11} and ε_{22} maps for (a, b, c) intact sample and for (d, e, f) 6 RATs sample, at loading stages reported on the Fig. 7 (grid size: 2813 x 4583 pixels, measurements basis 56 pixels = 424µm)

Fine Scale Effects Of The Alteration

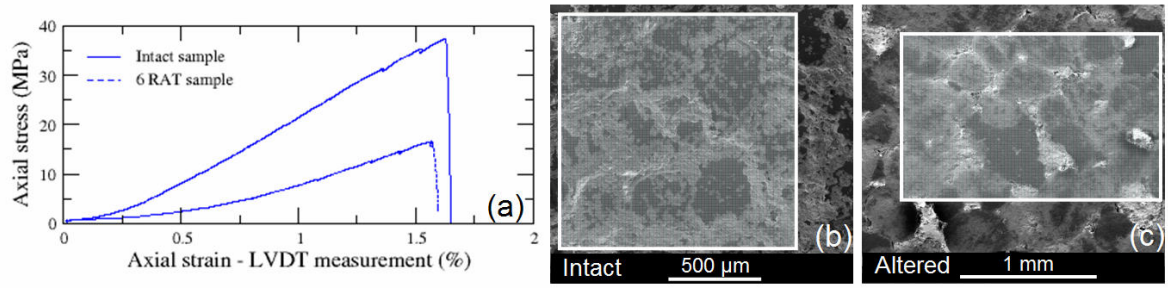


Figure 9 : (a) Stress-strain curves obtained on intact and 6 RATs small sample in the SEM, examples of (b) intact sample and (c) 6 RATs sample reference images acquired at magnification x60 and x80, respectively. The white areas correspond to reference grids

Fig. 9 presents the results of uniaxial loading in the SEM chamber for one intact and 6 RATs selected samples. The axial strain value on the loading curves is certainly overestimated because the LVDT takes into account the compliance of the whole compressive rig. Nevertheless, the altered sample is clearly weaker than the intact one.

<u>SEM Results On Intact Samples</u>

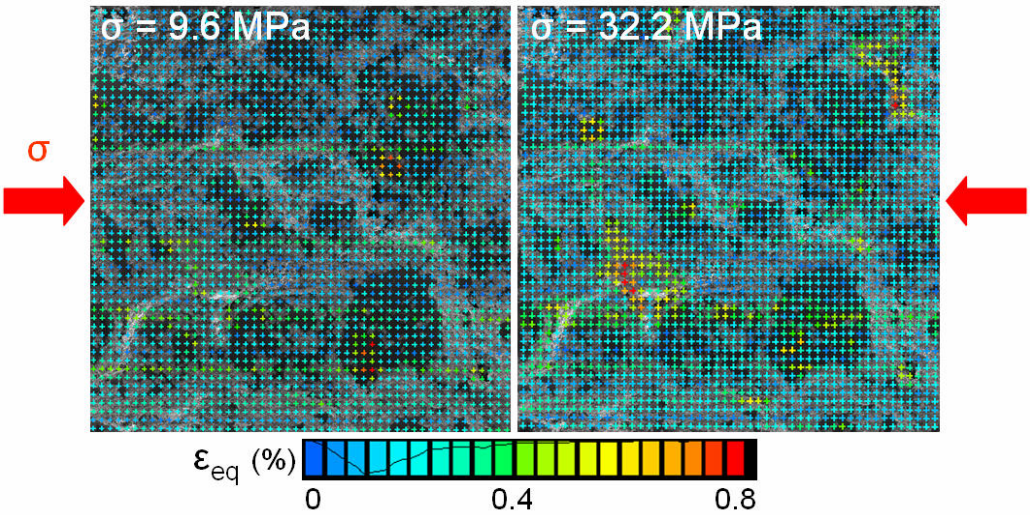


Figure 10 : Equivalent deformation maps of intact sample at two steps of loading, the reference image is reported on the Fig. 9(b) (grid size : 3100 x 3046 pixels and measurements basis of 18 µm)

Fig. 10 presents an equivalent deformation map, characteristic of the mechanical behavior of the intact sample. The observed deformation corresponds to closure of porosity (micro damage). Failure is sudden without precursor sign. These observations are in agreement with the results of optical DIC (Fig. 7). Indeed, except for the localization in porosity, the mean deformation of the area is similar to the mean deformation observed in Optical DIC (~0.2%). At this scale, we do not see obvious cracking which is also in agreement with Optical DIC observations, where the development of tensile cracks network happens at larger scale.

SEM Results On Altered Samples

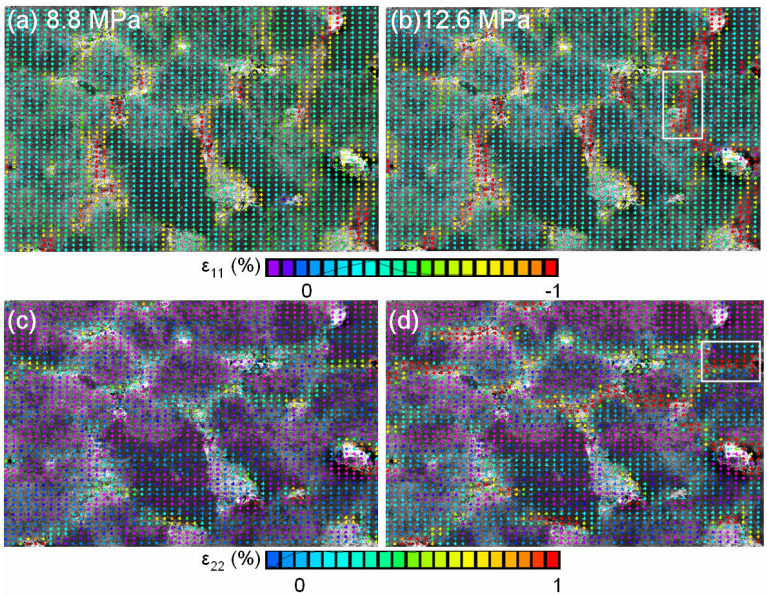


Figure 11 : In-plane strain components (a, b) ε_{11} and (c, d) ε_{22} maps of 6 RATs sample at two steps of loading, the reference image is reported on Fig. 9(c) (grid size : 3452 x 1899 pixels, measurements basis of 29 µm)

Fig. 11 presents ε_{11} and ε_{22} maps for altered sample at 0.2 MPa, 8.8 MPa and 12.6 MPa. The main result is the early appearance of microcracks, as well as porosity closure. Besides tensile microcracking visible on ε_{22} maps in white square, we also observed apparently compressive localizations on ε_{11} maps in white square, which actually represents grain overlapping.

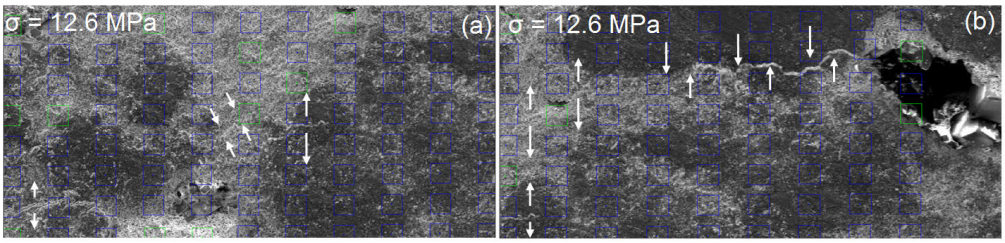


Figure 12 : (a) Extensive and compressive cracks and (b) Extensive cracks developed at grain interface in area reported on Fig. 11 (b, d) whites arrow directions highlight the opening or closure of cracks.

Microcracks initiate and develop at grain interfaces (Fig. 12(f)) or in the grains (Fig. 12(e)). This type of continuous strain accommodation is consistent with optical results and can explain the lower resistance of the altered sample and the more diffuse accommodation at macro scale.

5 – CONCLUSIONS

We have altered carbonate reservoir rock. We have observed hydromechanical evolutions, which are clearly related to microstructural changes. The DIC allows us to better understand how global damage mechanisms relate to the local microstructural evolutions of altered samples. At the macroscale, for the intact sample, an almost homogeneous deformation is observed followed by sudden failure at the peak stress. The altered samples sustain higher deformation levels and exhibit successive strain localization events. At the microscale, for the intact sample, the deformation is mostly accommodated within the inter-granular pores. In contrast, the altered samples show a gradual damage characterized by nucleation of microcracks at the grain contacts and their propagation within the grains. DIC results suggest that the dissolution of solid phases increases the local heterogeneities of the samples, leading to strain localization and mechanical weakening.

ACKNOWLEDGEMENTS

This work is co-funded by IFPEN and LMS. At IFPEN, we thank J. Guelard, J.M. Nez, M.-C. Lynch and L. Monmusson. for technical assistance with the acidizing experimental set-up and the petrophysical and mechanical characterizations. At LMS, we thank E. Héripré and D. Yang for assistance with the optical and SEM compression set-ups.

BIBLIOGRAPHY

[1] André, L., P. Audigane, M. Azaroual, , and A. Menjoz. "Numerical modeling of fluid–rock chemical interactions at the supercritical CO2–liquid interface during CO2 injection into a carbonate reservoir, the Dogger aquifer (Paris Basin, France)". *Energy Conversion and Management*, (2007) **48**(6), p.1782-1797.

[2] Le Guen, Y., R. Hellmann, M. Collombet, J.-P. Gratier, E. Brosse, and I. Fran. "Enhanced deformation of limestone and sandstone in the presence of high P CO2 fluids". *Earth*, (2007) 112.

[3] Bazin, B. "From matrix acidizing to acid fracturing: A laboratory evaluation of acid/rock interactions". *Old Production & Facilities*, **16**(1), p. 22–29.

[4] Noiriel, C. "Investigation of porosity and permeability effects from microstructure changes during limestone dissolution". *Geophysical Research Letters*, (2004), **31**(24), p.2-5.

[5] Egermann, P., E. Bemer, and B. Zinszner. "An experimental investigation of the rock properties evolution associated to different levels of CO2 injection like alteration processes". Paper SCA 2006-34, *Proceeding of the international Symposium of the Society of core Analysts*, Trondheim, Norway, (2006) p. 12-16.

[6] Bemer, E., and J. M. Lombard. (2009). From Injectivity to Integrity Studies of CO 2 Geological Storage. *Oil & Gas Science and Technology – Revue de l'Institut Français du Pétrole*, (2001) ***65***(3), p. 445-459.

[7] Gourri, A. "Contribution à l'étude de l'influence des conditions de drainage sur les propriétés poroélastiques des roches carbonatées". PhD study (1991), Grenoble 1, France.

[8] Anselmetti, F.S., and G.P, Eberli. "Controls on sonic velocity in carbonates". *Pure and Applied Geophysics*,(1993) **141**(2-4), p. 287-323.

[9] Dautriat, J., M. Bornert, N. Gland, A. Dimanov, and J. Raphanel. "Localized deformation induced by heterogeneities in porous carbonate analysed by multi-scale digital image correlation". *Tectonophysics*, (2011) **503**(1-2), p. 100-116.

[10] Zhu, W. and T.-F. Wong. "The transition from brittle faulting to cataclastic flow: Permeability evolution" *Journal of Geophysical Research*. (1997) **102**(B2), p. 3027-3041.

[11] Allais L., Bornert M., Bretheau T. amd Caldemaison D., 'Experimental characterisation of the local strain field in a heterogeneous elastoplastic material', *Acta. Mettal. Mater*, **42**, 1994.

[12] Doumalin P., Bornert M. and Caldemaison D., 'Microextensometry by DIC applied to micromechanical studies using SEM', *Proc. Int. Conf. Adv. Techn. Exp. Mech.*, 1999.

Annexe 5

Publication 2

Proceeding – ARMA_2013_-93 – préparé pour présentation à la conférence : 'American rock mechanics association' – San Francisco – Etats Unis – 23 au 26 Juin 2013

Titre :

Mechanical evolution of an altered limestone using 2D and 3D digital image correlation (DIC)

ARMA 13-393

Mechanical evolution of an altered limestone using 2D and 3D digital image correlation (DIC)

Zinsmeister, L., and Dautriat, J.
IFP Energies nouvelles, Rueil Malmaison, 92852, France
Dimanov, A., and Raphanel, J.
Ecole Polytechnique, Palaiseau, 91128, France
Bornert, M.
Ecole des Ponts ParisTech, Champs sur Marne, 77455, France

Copyright 2013 ARMA, American Rock Mechanics Association

This paper was prepared for presentation at the 47th US Rock Mechanics / Geomechanics Symposium held in San Francisco, CA, USA, 23-26 June 2013.

ABSTRACT: In the context of long term CO_2 sequestration, we present an original laboratory workflow which allows a multi scale analysis of the effect of chemical alteration on both petrophysical and mechanical properties of a carbonate. The relationship between the mechanical behavior and the microstructural evolutions is investigated using digital image correlation techniques. For this purpose we imaged intact and altered samples during uniaxial and triaxial mechanical tests using optical microscopy, scanning electron microscopy (SEM) and 3D X-ray micro-tomography. The porosity increase induced by homogeneous alteration leads to lower elastic moduli and critical stress at sample failure. Furthermore, at similar confining pressures we observed a transition from brittle to ductile failure mechanisms with the increase of alteration level. These observations are verified by digital image correlation. Altered samples indicate early strain localization which was not observed in the intact ones. These early localization events induce more compaction at the macroscopic scale and tend to initiate early fracturing.

1. INTRODUCTION

The injection of CO_2 in deep saline aquifer gave rise to the study of carbonates because these reservoirs represent the major storage capacities for this type of storage [1]. The injection of reactive fluids like supercritical CO_2 induces a dissolution which can decrease the storage capacities by fracturing or compaction effects. In case of long term storage, the CO_2 plume is diluted and homogeneous alteration of the host rock becomes a major type of dissolution [2]. In this context, the description of the mechanical behavior by a predictive 4D model is necessary to monitor the storage site.

In order to mimic the homogeneous dissolution pattern, Egermann *et al.* [3] developed a protocol based on the use of a retarded acid treatment and applied it for studying the mechanical response. A softening of the material was recorded but could not be attributed only to an increase of porosity [4]. Microstructural effects of the alteration were called to explain this difference but no evidence has been shown in these early studies.

In order to evaluate the influence of microstructure on the mechanical behavior, digital image correlation (DIC) is a way to detect the strain localization by imaging a surface (or a volume) during a mechanical loading. This technique has been employed in 2D on unconsolidated materials [5], in 3D on mudstone [6] using synchrotron radiation allowing the description of shear bands, and on sandstone [7] using a 3D X-ray CT but by *post-mortem* sample comparison. The only use of DIC on carbonates, to the authors knowledge, is found in [8] which is a 2D study of non altered Estaillade limestone. This last study, combining optical and SEM data, establishes the feasibility of DIC on materials which sustain very small deformation only such as carbonates. The main results were to verify the closing of porosity and the brittle fracture development between the microporous parts of the sample.

In this paper, we present a multi-scale approach coupling 2D optical, 2D scanning Electron Microscopy (SEM) and 3D microtomography (µ-CT) methods. The study is made on the oolitic Lavoux limestone chosen for its simple microstructure: microporous oolites, cement and macroporosity. Our purpose is to determine the influence of the microstructural changes on the mechanical behavior of an altered sample and to seek a link between our observations on carbonates and the better known behavior of sandstone.

2. MATERIAL AND METHODS

2.1. Microstructural observations of intact samples

The block used to plug cylindrical samples comes from the Lavoux limestone quarry located in the vicinity of Poitiers in France. The thin section observation, shown

in Fig. 1 evidences the micro structure of the material. This material is composed of microporous oolites ranging from 100 to 500 µm (Fig. 1 (a)) in diameter, microporous pellets ranging from 20 to 60 µm in diameter (Fig. 1(b)) and bioclasts (Fig. 1(d)). Two kinds of cements are observed; lightly porous syntaxial cement nucleated from echinoderma fragments (Fig. 1(c)) and sparitic cement around the oolites (well identified in fig.1).

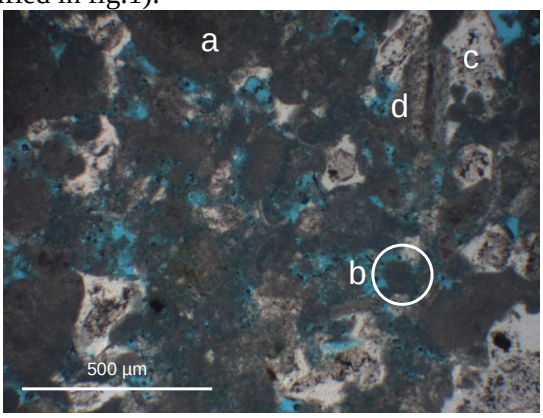


Fig. 1. Thin section of Lavoux limestone in white light microscopy. (a) Oolite (b) Pellet (c) Syntaxial cements (d) Bioclast. The porosity appears in blue due to colored epoxy saturation.

These observations are completed by SEM imaging, confirming the description. To clearly illustrate this microstructure we present a picture from another block of the same material which contains larger grains and pores (Fig.2). We notice the variability of the microporosity contained in the oolites and the smooth surface of the sparitic cement.

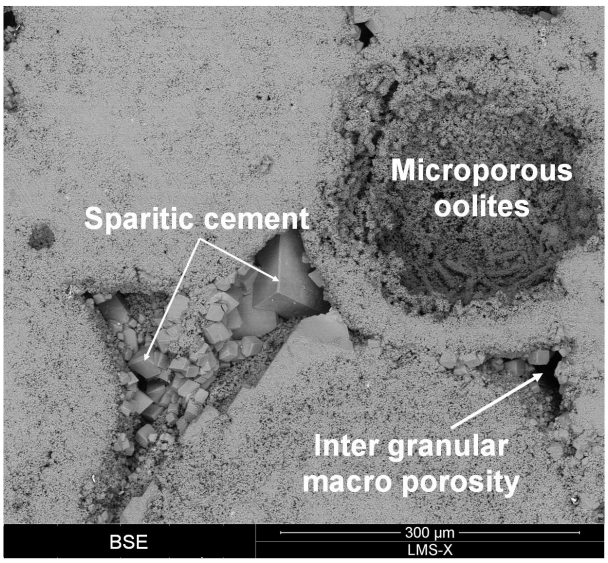


Fig. 2. SEM micrograph of polished section of the Lavoux limestone.

2.2. *Petrophysical description of intact samples*

This characterization is based on several laboratory petrophysical methods

- Porosity inferred from dry/wet weight and medical scanner X-Ray attenuation,
- Brine permeability,
- Nuclear magnetic resonance (NMR) to estimate the porosity modality,
- High Pressure Mercury Injection (HPMI) to determine the pore throat distribution.

53 cylindrical samples have been scanned to infer their porosities. Each sample is scanned every millimeter along its axis. A mean porosity of each sample is determined from calibration curves of X-Ray attenuation obtained on mono-mineral calcite samples covering a range of known porosities. The porosity varies from 22% to 26%. For the mechanical tests, we selected samples with a mean porosity of 24±0.5% and without large local heterogeneities visible on CT-scan slides. The permeability measured on three samples selected for mechanical tests has a mean value of 17.8 mD (Table 15). The discrepancy between scanner and brine porosities can be explained by the occurrence of non connected porosity [9] (Sterpenich *et al*, 2009)

Table 15 Initial permeability and water porosity for three samples.

Sample name	Permeability	Brine Porosity (%)
Z10	17,1	23,8
Z17	17,1	23,6
Z21	19,1	24,2

The T2 time relaxation curve obtained from NMR measurement on a sample saturated by 20 g/l NaCl brine is presented Fig.3. Instead of two expected peaks from the microstructural description, the NMR signal is unimodal. This phenomenon had been explained by a diffusion pore coupling by [10] *Vincent et al, (2011)* and relates to the connectivity between the microporosity and the macroporosity. The two small peaks have no physical meaning.

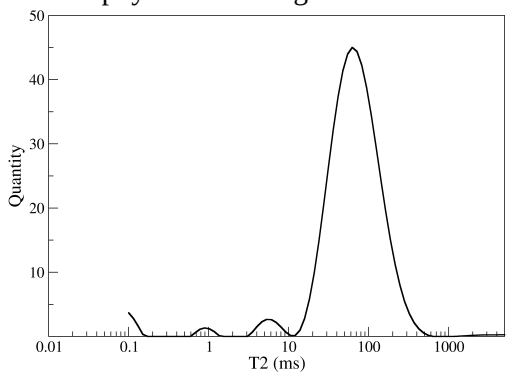


Fig. 3. Distribution of the T2 relaxation time inferred from NMR on the Lavoux limestone.

However the HPMI results point to a bimodal repartition of the pore throat (Fig.4), characterized by two peaks at 0.3 and 4 µm corresponding to the micro and the macro-porosity pore throat, respectively.

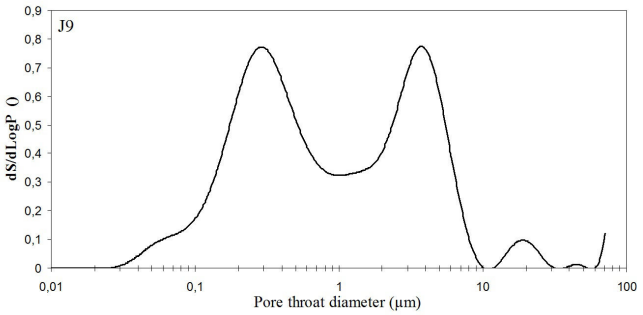


Fig.4. Distribution of the pore throat diameter obtained by HPMI on an example of the presented limestone.

2.3. *Alteration protocol*

Since all mechanical tests are destructive, the effect of chemical alteration has to be investigated using companion samples altered prior to the mechanical tests, hence the importance of sample selection to reduce variability.

The sample alteration technique is based on a Retarded Acid Treatment (RAT) following the protocol developed by [3]. This methodology allows a homogeneous alteration of the sample, conversely to CO_2-brine injection [11, 9, 12, 13, 14]. The experimental set-up is composed of a confining Hassler cell, which allows application of a hydrostatic stress on a sample isolated fromm the confining medium by a core sleeve. The intact state permeability is measured at a confining pressure Pc = 6 MPa. Afterwards, the brine is flushed out by the injection of three pore volumes (V_p) of an initially inactive acid. The sample is then placed under undrained conditions and the temperature is increased up to 60°C to activate the acidification reaction. When the pore pressure reaches a plateau, usually after one night, the equilibrium between reactive fluid and carbonate is assumed, and the core is flushed by fresh brine. Effluents are collected and the particle size distribution is measured by laser diffraction. The complete protocol is repeated until a chosen number of RAT is reached. Permeability is measured between each RAT. More details on the method and petrophysical results are provided by [15].

2.4. *Conventional characterization of sample mechanical properties.*

The aim of these classical experiments is the estimation of static elastic properties and mechanical strength evolutions due to the alteration. Experiments are performed on brine-saturated samples loaded with a conventional triaxial cell. Axial and radial strains are recorded using strain gages glued on the circumferential surface of the plug. The tests have been performed on a series of intact, 3 RAT and 6 RAT companion samples, corresponding to homogeneous porosity increases of 1.2 and 2.4 %.

For each alteration degree, triaxial experiments have been run at 6 MPa, 11 MPa and 16 MPa of confining pressure and at a constant pore pressure of 1 MPa. The elastic moduli, here the Young Modulus and the Poisson's ratio, are estimated at the beginning of the test during an axial loading/unloading in the elastic domain, at a low confining pressure of 2 MPa Fig.5 (segment I). Subsequently, the pressure is increased hydrostatically up to one of the values stated previously Fig.5 (segment II) and then the triaxial test starts by increasing the axial stress up to the sample failure at constant confining pressure Fig.5 (segment III). The protocol is schematically summarized in the Fig..

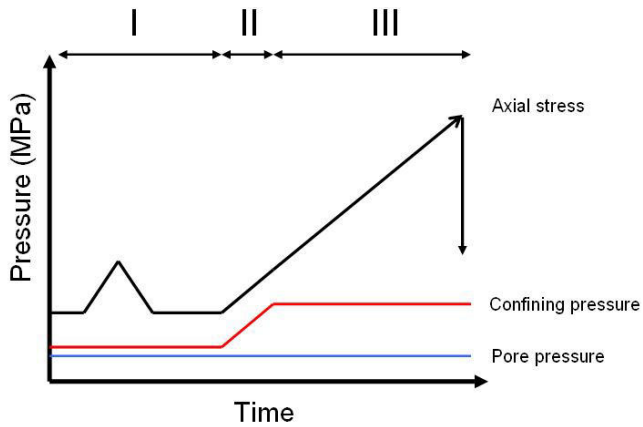


Fig.5. Triaxial test protocol.

2.5. *2D-DIC and 3D-DIC methods*

The aim of the DIC method is the determination of the deformation field from the displacement field obtained by the comparison between a reference picture (shot before loading) and pictures acquired at successive stages of a mechanical solicitation [16]. The reference picture is discretized onto a grid of points, which is centered on a correlation domain. Each correlation domain is defined by its grey level fluctuations (defined in 8 bits or 16 bits). The DIC is based on the determination of the most similar domain in the deformed picture by the minimization of a correlation criterion with the assumption of a conservation of the grey level distribution during the transformation in these domains. The position of each central point of the domains on the deformed configuration allows the determination of the displacement field. A subpixel resolution on the displacement is obtained by a bilinear interpolation of the grey level in each domain.

Because of the small deformation sustained by our carbonates before failure (~0.5%), we paid particular attention to the acquisition parameters to get a better compromise between displacement field uncertainty and spatial resolution. To estimate these uncertainties, rigid body motions have been performed at the reference stage following the methodology described by [8].

Once the displacement field is obtained as a discrete set of values on the grid of points, the local transformation

gradient can be computed by derivation, using a scheme which will determine the local gage size. For more details, refer to [17, 18]. With the small strain assumption, the in-plane components of the small strain tensor are thus known. Let x be the compression axis. It is reasonable to assume that the normal axis to the observation plane, say z, is a principal axis of deformation and that there is no out of plane rotation, so that εzx = εzy =0, furthermore assuming axisymmetry εyy = εzz .The equivalent von Mises strain used in this paper can then be deduced using the relation (1) .

$$\varepsilon_{eq} = \frac{2}{3}\sqrt{(\varepsilon_{xx} - \varepsilon_{yy})^2 + 4(\varepsilon_{xy})^2} \qquad (1)$$

By extension the 3D-DIC method is based on the same principle but adding a dimension in the search of the correlation domain which becomes a cube [19] and the measurements are made on a voxel which is the 3D equivalent of a pixel.

As for the 2D-DIC, once the displacement field is obtained, the six components of the small strain tensor can be computed.

2.6. Mechanical tests coupled to image acquisitions for DIC post-processing.

The image acquisitions prior to DIC had been obtained for three methods of investigations. In this study, we applied conventional 2D-DIC techniques on optic and SEM images of the surface sample uniaxially loaded and extended this technique to 3D volumes imaged by micro-tomography, at successive triaxial stress states.

- *Optical tests*

The macroscopic compression tests are performed on a uniaxial loading frame controlled in displacement. Cylindrical samples of 35 mm high and 36 mm in diameter are machined to produce two opposite flattened 25 mm wide surfaces. Load and displacement are measured by a strength sensor and a Linear Variable Differential Transformer (LVDT), respectively. A constant displacement rate of 1 µm/s is imposed until sample failure. During loading, images of one flattened surface are taken at constant time intervals by a high resolution Charge-Coupled Device (CCD) camera (4872x3248 ~16 Mpixel and 4904x3280 for the second one) covering the whole surface (with pixel size of ~7 µm at x1 magnification). Black and white painting sprays are applied on the imaged surface to enhance local contrast and optimize the DIC efficiency.

- *SEM tests*

Small parallelepiped samples (14 mm x 7 mm) are tested inside a SEM equipped with a simple compression rig (maximum load 5 kN). Displacement is controlled at a rate of ~1 µm/s. The SEM image acquisition lasts several minutes; consequently the loading is performed in a stepwise manner. The natural contrast of the material is sufficient for DIC, but the contrast and brightness must be optimized before each acquisition to spread the grey level histogram over the full 16 bit range. The magnification varies from x60 to x80, corresponding to imaged surfaces of 2.1mm x 1.8 mm (5 µm of resolution) and 1.6 mm x 1.4 mm (3.9 µm of resolution).

- *µ-Tomography tests*

The triaxial tests are carried out using a miniaturized triaxial cell developed at IFPEN on small cylindrical samples of 10 mm in diameter and 20 mm in length. The body of the cell is made of aluminum alloy minimizing the absorption of the X-ray emitted by the µ-tomograph source. This set up allows the application of a confining pressure up to 15 MPa and a pore pressure, controlled by two independent pumps. The axial load is measured by a sensor and its maximum is 10 kN. The axial stress is manually driven by a screw. Since the time required for a set of radiograph projection acquisitions takes about 3 hours, the sample is loaded in stepwise a manner. The number and the amplitude of load steps are estimated from macroscopic triaxial tests.

The best conditions for image acquisitions and reconstructions have been derived from uncertainty minimization based on rigid body motions [19].

The conditions of radiograph acquisition for the 10-mm diameter sample with a resolution of 5 microns are the following: Magnification x10. Source-object distance 20 mm, source-detector distance 200 mm, 2000×2000 field of view, 120KV, 150µA, 0.2° angular step. Then, the volumes are reconstructed with respect of ¼ resolution corresponding to a voxel size of 20µm. The optimization of the ratio signal/noise to improve DIC efficiency requires a filtering of the volumes using in-house algorithm.

3. EFFECT OF ALTERATION

3.1. Evolution of the microstructure

The porosity profiles after alteration obtained by CT-scanner validate the homogeneity of the alteration for 3 and 6 RAT (Fig.6). The mean increase of porosity per RAT is 0.4 % as shown in the Fig.6. This value is in good agreement with values obtained by the other methods of porosity estimation.

The SEM micrographs of Fig.7 highlight the apparition on the surface of the sparitic cement of detachment of imbricate minerals (red squares in Fig.7.b,c,d) and "corrosion pits" (Fig.7.a) leading to surface roughness not observed on intact samples. Fig.7.d is obtained on a

13 RAT sample; we observed an alteration of huge rhombohedra in the crystalline plane.

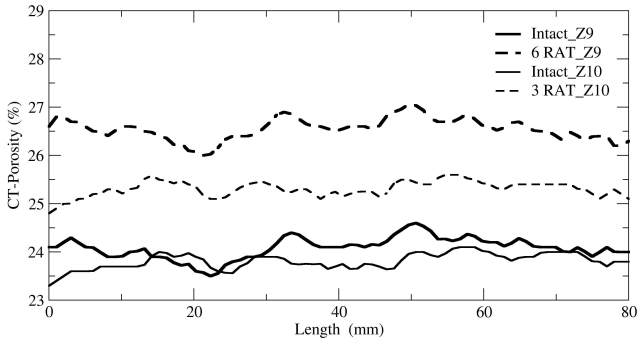


Fig.6. Porosity evolutions with alteration for two samples used for mechanical tests, Z9 and Z10, altered respectively by 6 and 3 RAT.

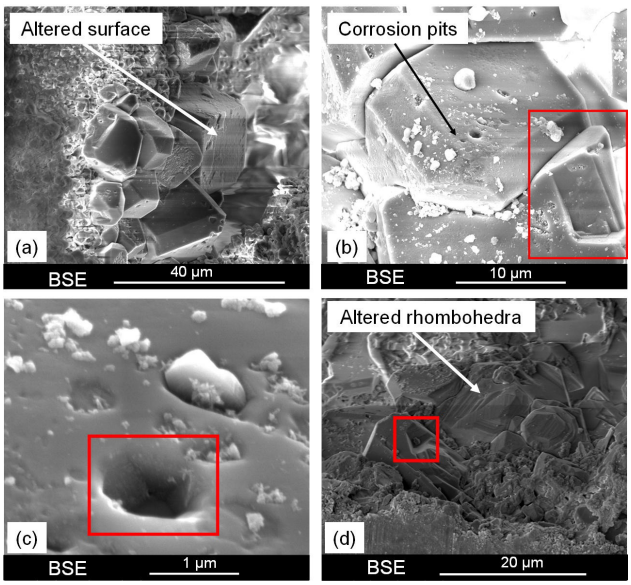


Fig.7. Altered surface at 2 RAT (a), Detachment of sparitic cement at 2 RAT (b), (c) and 13 RAT (d).

These observations are the only evidences of the alteration at the microscale. However, the mechanisms of corrosion pits formation and particle detachment seem insufficient to explain the increase of porosity with alteration obtained from CT-scanner profiles. We suppose that a part of the micrite at the surface and inside the oolites is dissolved but because of the impossibility to make a before/after alteration in SEM and optical microscope there is no evidence. To validate this assumption we need to image the same sample at different stages of alteration. For instance, [9]Noiriel *et al*, 2004, used X-ray microtomography on small Lerouville carbonate samples and was able to quantify the dissolved calcite after an heterogeneous alteration. However, in our case it would take a large number of RATs to reach at least one voxel of dissolution at the interface between pores and grains.

3.2. Macroscopic triaxial results

Table 2 summarizes the main results inferred from triaxial tests, performed on intact, 3 RAT and 6 RAT samples.

We recall that elastic moduli E and v are obtained during a loading/unloading cycle at Pc = 2MPa. The confining pressure is then increased up to a chosen value (6, 11 or 16 MPa) to determine the failure stresses. All the tests are performed at a constant pore pressure Pp = 1MPa.

C* and Q* correspond to critical effective pressure and critical deviatoric stress at sample failure. They are determined:

-in the brittle regime, at the peak stress,

-in the ductile regime, from the recorded piston velocity.

Since the press is force controlled, at the end of the elastic regime, the velocity of the press increases due to dilatancy or shear development. The failure stress is then determined at the intersection of the tangents of the velocity in the elastic regime and during the failure propagation as shown in Fig.8**.**

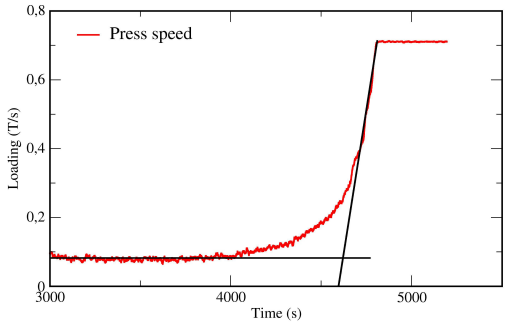


Fig.8. Evolution of the press velocity with time and method of C and Q* determination.*

The alteration leads to a diminution of the Young's modulus. The mean Young's modulus is 22.0 GPa for intact sample, 19.2 GPa for 3 RAT and 15.1 GPa for 6 RAT. This weakening can be explained by two factors; on the one hand an increase of the mean porosity, on the other hand the evolution of the microstructure. The contribution of each factor to the global weakening of the material is not obvious at this stage of the study. However, we can assume that the increase of the mean porosity should lead to a linear dependency of the Young's modulus on the alteration, which is not observed here.

Fig.9 presents the axial and radial deformation recorded by strain gages during triaxial compaction tests, at effective pressures of 5, 10 and 15 MPa (Fig.9 a,b,c respectively), and for intact, 3 RAT and 6 RAT samples.

Table 16. Mechanical properties inferred from triaxial cell and sorted by RAT number: Initial and after alteration CT-scanner mean porosity, Poisson's ratio, Young's modulus, mean Young's modulus, confining pressure of triaxial tests, critical effective pressure and critical deviatoric stress

Sample	RAT n°	Φ_{ini} (%)	Φ_{Alt} (%)	v	E (GPa)	E mean (GPa)	Pc (MPa)	Q* (MPa)	C* (MPa)
Z13	0	24,4	24,4	0,26	18,3	22,0	6	32,4	15,7
Z16	0	24,1	24,1	0,28	25,8		11	37,9	22,5
Z18	0	24,2	24,2	0,24	21,9		16	37,3	27,3
Z48	3	23,4	24,6	0,22	19,4	19,2	6	31,6	15,7
Z10	3	23,8	25,3	0,28	20,0		11	29,5	19,9
Z21	3	24,1	25,6	0,25	18,2		16	28,5	24,8
Z9	6	24,1	26,6	0,27	13,4	15,1	6	21,4	12,2
Z11	6	23,7	26,5	0,32	16,5		6	26,2	13,7
Z51	6	23,7	26,1	0,25	14,6		11	24,1	18,3
Z17	6	23,9	26,3	0,24	15,8		16	22,3	22,6

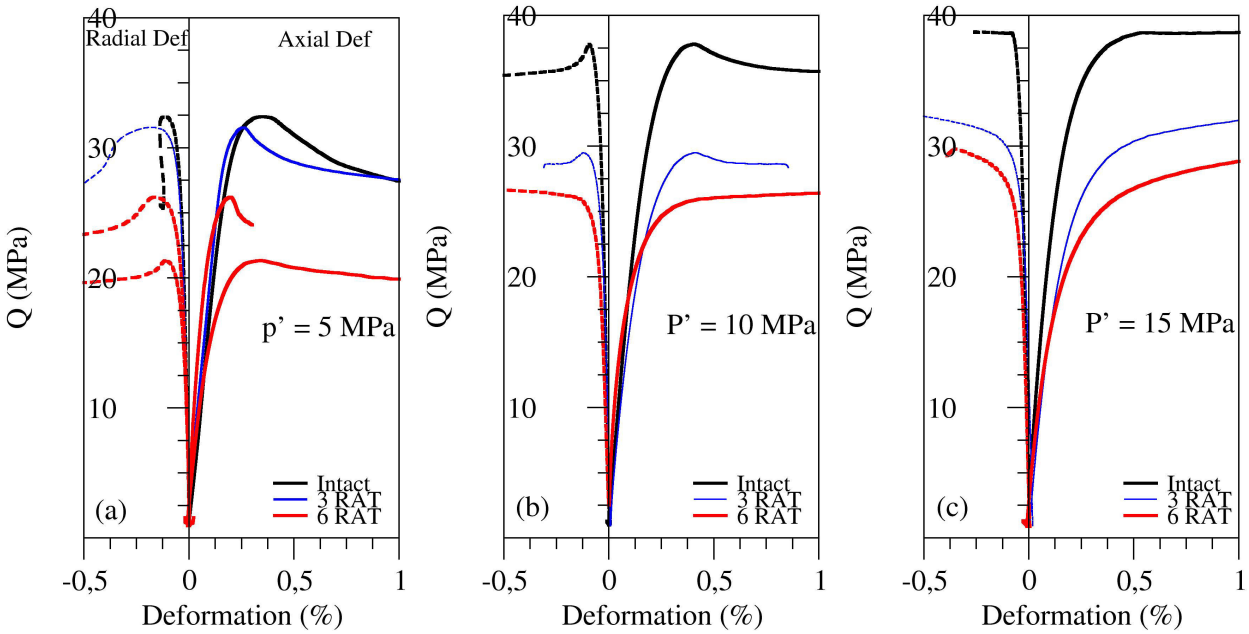


Fig.9. Radial and axial deformations at given mean effective pressure of (a) 5 MPa (b) 10 MPa and (c) 15 MPa measured by strain gauges

First of all, the alteration systematically leads to a decrease of the critical stresses. However, sample Z48 (3 RAT, 5 MPa) fails close to the corresponding intact sample which is probably due to its porosity being only 0.2 % higher (see

Table 16). Despite the careful selection of the samples, dispersion in the critical stress levels is observed due to the intrinsic nature of carbonates.

At 5 MPa of effective pressure, independently of the alteration level all the samples fail in the brittle regime as indicated by peak stresses (Fig.9.a). Conversely at 15 MPa, the two altered samples fail in the ductile regime but the intact sample seems to present a weak peak stress (Fig.9.c). At 10 MPa, intact and 3 RAT samples are still in the brittle regime, but 6 RAT samples exhibit a ductile behaviour (Fig.9.b).

Fig.5 hightlights the transition from a brittle regime to a ductile regime (as observed in sandstone by [20, 21, 22] enhanced by the alteration at a given confining pressure.

4. ASSESMENT OF STRAIN HETEROGENEITY BY DIC

4.1. Uniaxial compression of macroscopic samples

We have tested three intact samples, one 3 RAT sample and three 6 RAT samples. We discuss one representative example of each case.
We present (Fig10 a,b,c) loading curves with the three stages analyzed by 2D DIC.

It was not possible to compare Young's moduli and Poisson's ratio obtained by DIC and strain gages. A sliding motion effect of the sample induces an over estimation of the axial deformation and an under estimation of the radial one. The mean values of the strain computed by DIC are consequently affected but the strain maps represent the local variations and translate the heterogeneity of the deformation at the local level.

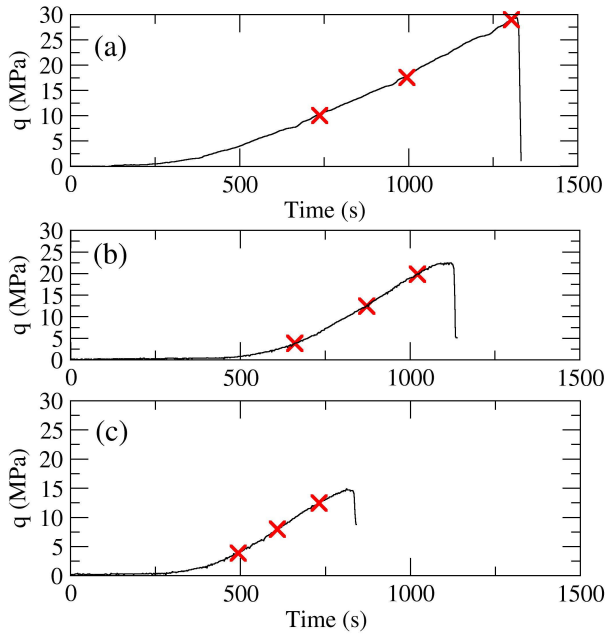


Fig 10. Loading curves for intact, 3 RAT and 6 RAT samples, denoted (a), (b) and (c) respectively. Red crosses point out the loading stages for which the strain map are presented in the Fig. 11, 12 and 13.

The in-plane strains ε_{11}, ε_{22} and ε_{eq} maps for intact and altered samples at three different stages of loading and alterations are presented in Fig. 11, 12 and 13. The objective is to determine if the changes in Young's moduli recorded by gages are only linked to the increase of porosity in which case the axial strain would be rather homogeneous or if the evolutions of the microstructure described in section 4.1 also influence the mechanical behavior of the rock in which case one expects more local heterogeneities.

The intact samples present a mean deformation before the failure of ~0.2%. The failure comes suddenly, and the UCS ranges from 26 to 32 MPa. The analysis of ε_{11} and ε_{22} maps for the sample B (Fig. 11) taken as example, can be sequenced as follow. At 10.1 MPa, the strain is uniform (ε_{11} ~ -0.02%) as expressed by a light blue color. At 17.6MPa, ε_{11} ~ -0.04%, some spots present higher deformation levels (0.2%), seemingly at random. Finally at 29.0 MPa the ε_{22} map shows clearly that tensile cracks develop linking the previously noticed spots.

As shown in the Fig. 12, the 3 RAT sample presents at 3.9 MPa a very low uniform axial deformation of 0.02 %, further in the loading (12.5 MPa) we observe a higher mean deformation (ε_{11}>0.15%) and localization of ε_{11} in horizontal compression patterns, and no significant transverse deformation ε_{22}. Finally at 19.9 MPa (2.3 MPa from failure) the mean axial

deformation is up to 0.23% and the initial localization has developed so-called “compaction bands”. The ε_{22} map shows that local cracks appear at the top right of the sample leading to one of the final failure patterns.
The micro-structural events are characterized by a more important pore closure and a more continuous failure than the intact sample. The initiation of the failure is more visible.

At similar stress (4 MPa), the 6 RAT samples (Fig. 13) highlight a mean axial deformation of 0.1 % and a compaction localization in the top left of the sample: while the ε_{22} map is uniform. At 8 MPa, the mean axial deformation equals to 0.2% and some initial localization has developed. There are also some localized zones on the ε_{22} map. At the top right, initiation of crack opening is visible. Finally, at 12.5 MPa (2 Mpa from failure) the mean deformation has not increased but there is a wide “compaction band” and in the ε_{22} map large cracks are visible.
A more detailed study of the microstructure at the strain localization leads to the description of the local type of deformation mechanisms. One part of the deformation is due to microcracking events leading to a major crack where “cataclastic” events are observed at the top left. Where there is no local deformation, the sample deforms uniformly by pore compression.

In conclusion, the three kinds of samples present contrasting deformation patterns. The intact one progressively develops an interconnected network of shear bands leading to the development of diffuse micro damage until the peak stress. The 3 RAT sample is similar to the intact one but presents a higher compressive behavior with more visible “compression bands” until failure. Similarly the 6 RAT samples demonstrate a higher mean compressibility. Furthermore we observe some micro crack apertures while loading the 6 RAT sample, which can explain the higher mean deformation and the non elastic deformation coupled to cataclastic events.
The microstructural clues observed at the macroscale have to be confirmed at the microscale. To this end, the results at SEM scale are presented in the next section.

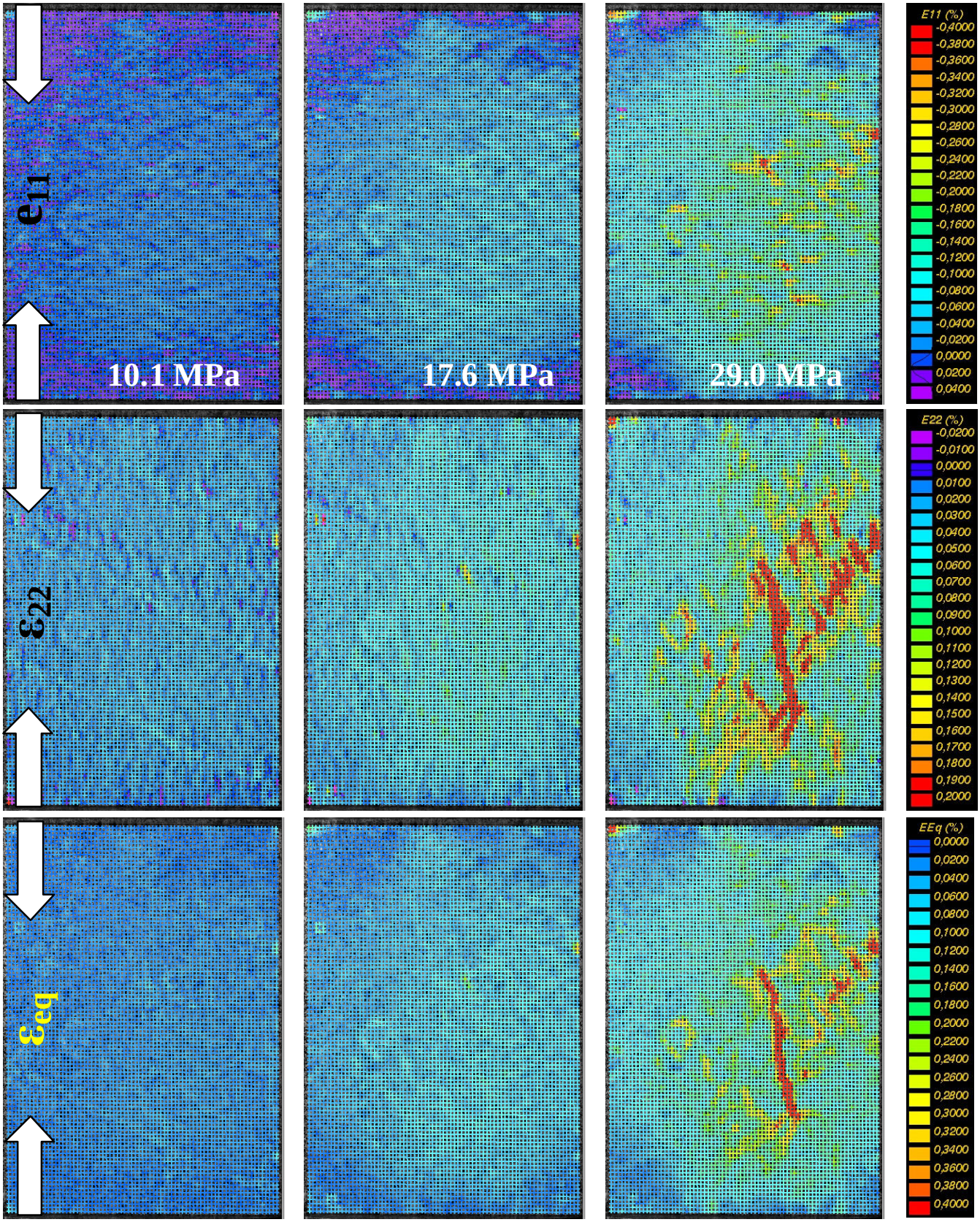
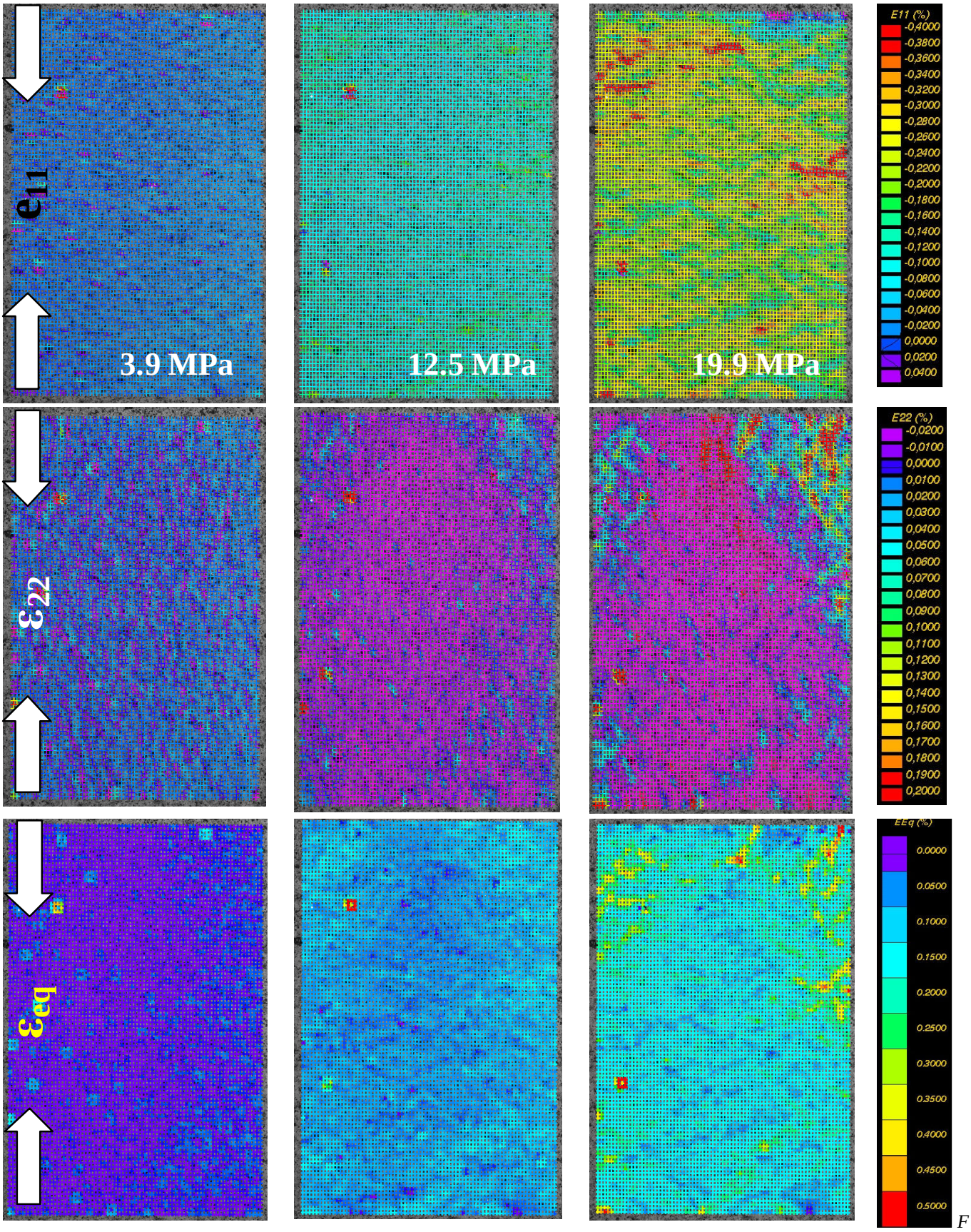


Fig.11. In-plane strain components ε_{11}, ε_{22} and ε_{eq} maps for intact sample, at loading stages 10.1, 17.6 and 29.0 MPa reported in the Fig. 10. Grid size = 2813 x 4583 pixels. Measurements basis of 56 pixels = 424 µm.



F

fig. 12 In-plane strain components ε_{11}, ε_{22} and ε_{eq} maps for 3RAT sample, at loading stages 3.9, 12.5 and 19.9 MPa reported in the Fig. 10. Grid size = 2813 x 4583 pixels. Measurements basis of 56 pixels = 424 µm.

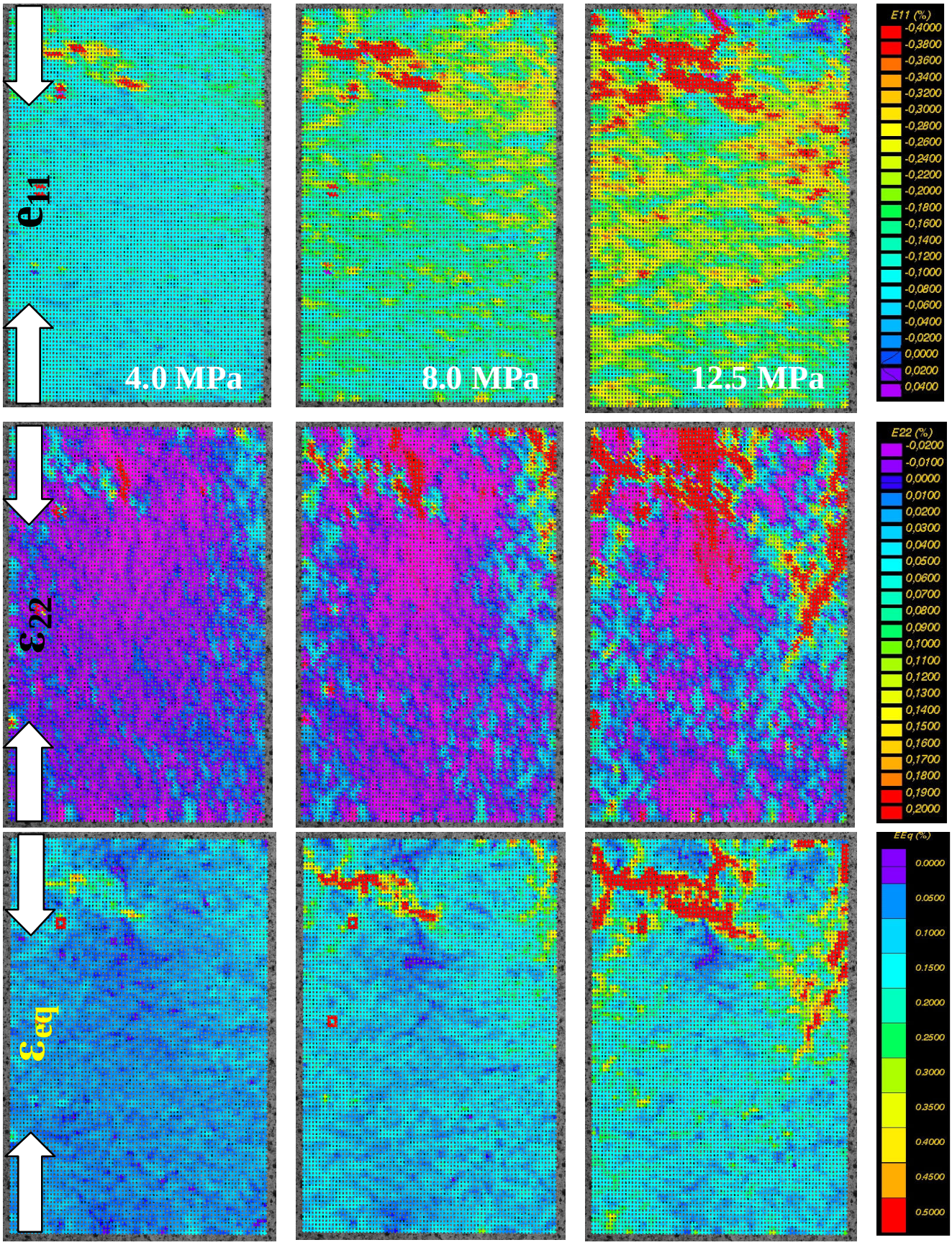


Fig. 13. In-plane strain components ε_{11}, ε_{22} and ε_{eq} maps for 6RAT sample, at loading stages 4.0, 8.0 and 12.5 MPa reported in the Fig. 10. Grid size = 2813 x 4583 pixels. Measurements basis of 56 pixels = 424 µm.

4.2. 2D SEM microscopic scale results

Fig. presents the position of the initial grid chosen for the two examples presented in the following and the axial load in MPa in function of the displacement measured by external LVDT.

The intact sample (Fig. 15) presents a mean equivalent deformation map dominated by Moiré's pattern traducing a small mean deformation and a slight effect of out-of plane displacement. Small errors are due to the polished oolites surface without good local contrast. Nevertheless, the mean calculated deformation is above 0.2%. Even near the failure value (32.2 MPa) the only microstructural clues of deformation is a closure of the porosity. These observations are in good correlation with the 2D-DIC.

Fig. present ε_{11} and ε_{22} maps for a 6 RAT sample at 8.8 MPa and 12.6 MPa of loading. The main result is the early appearance of microcracks, as well as porosity closure. Besides tensile microcracking visible on the ε_{22} map (inside the white rectangle, Fig. .d), we also observe apparently compressive localizations on the ε_{11} map (inside the white rectangle, Fig. 16 .b), which actually represents grain overlapping. Micro cracks initiate and develop at grain interfaces (Fig. .b) or in the grains (Fig. 13 .a).

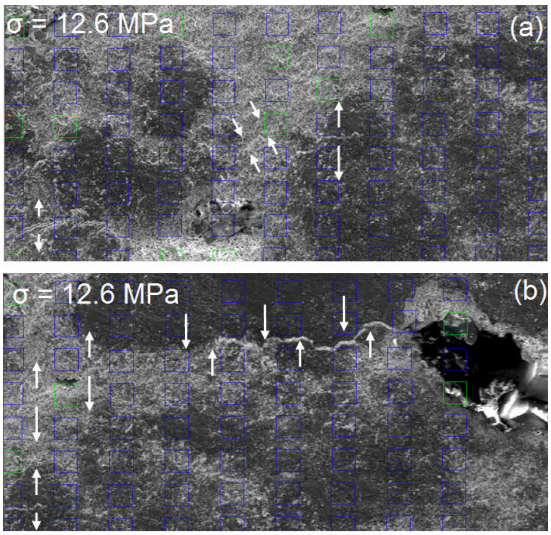


Fig. 13. (a) Extensive and compressive cracks and (b) Extensive cracks developed at grain interface in area reported on Fig. 7. (b) Whites arrow directions highlight the opening or closure of cracks.

This type of continuous strain accommodation is consistent with optical results and can explain the lower resistance of the altered sample and the more diffuse accommodation at macro scale. These observations had been made on 10 intact samples and three 6 RAT samples.

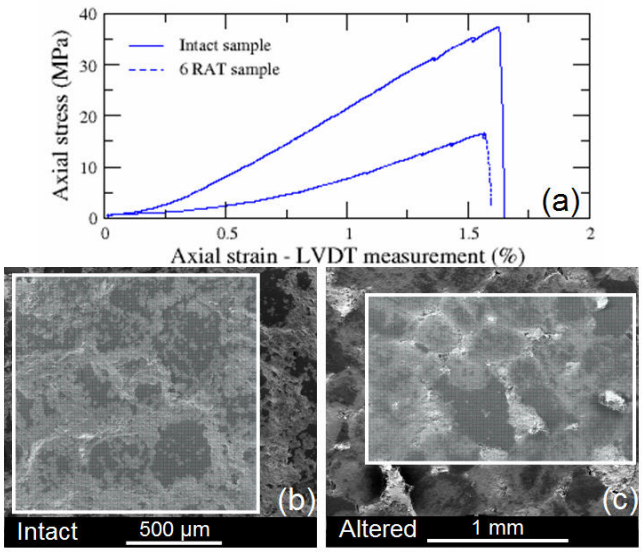


Fig.14. (a) Stress-strain curves obtained on intact and 6 RATs small sample in the SEM, examples of (b) intact sample and (c) 6 RATs sample reference images acquired at magnification X60 and X80, respectively. White areas correspond to reference grids.

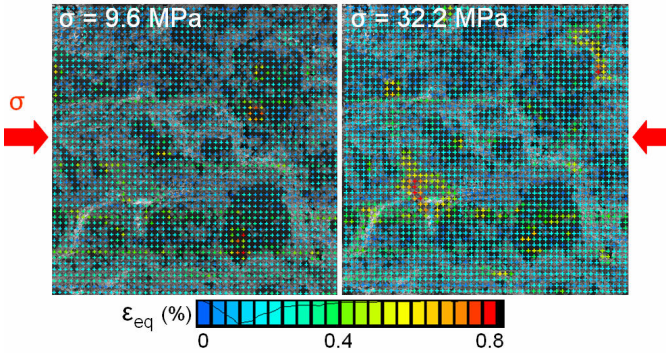


Fig. 15. Equivalent deformation maps for intact sample at 9.6 and 32.3 MPa. Grid size : 3100 x 3046 pixels and measurements basis : 18 µm.

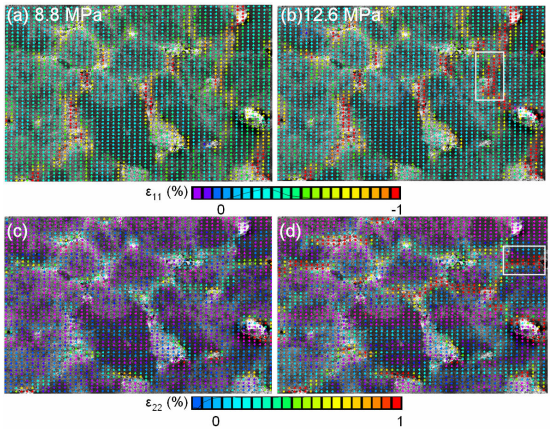


Fig. 16. In-plane strain components (a, b) ε11 and (c, d) ε22 maps of 6 RATs sample at 8.8 and 12.6 MPa. Grid size : 3452 x 1899 pixels, measurements basis : 29 µm.

4.3. 3D X-ray microtomography DIC

Uniaxial tests had been performed on intact samples under µ-CT and the results were the same than those of 2D DIC presented in the previous sections: no early deformations were visible until the peak stress and the fracture development.

In this section, we focus on two triaxial tests in µ-CT made at a confining pressure of 5 MPa, on an intact and a 6 RAT altered sample.

- Intact sample

Initially, we present the loading curve for the intact sample (Fig. 17)

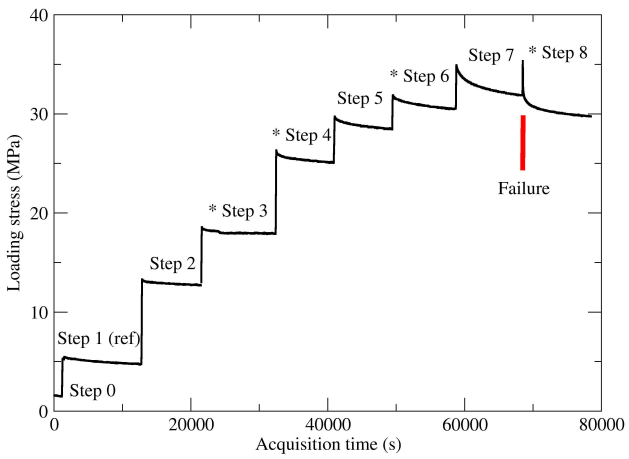


Fig. 17. Loading curve of the test performed on the intact sample at a confining pressure of 5 MPa. The steps pointed out by a star correspond to ones reported in Fig. 20

The intact sample presents a mean deformation of 0.05% at the beginning of the loading and up to 0.2% before the failure. No localization is visible on the intact sample at 18 MPa and the mean axial deformation is low (ε11 = 0.07%), at 31MPa the strain remains almost uniform and ε11 ~ 0.15 %. The failure occurs at 36 MPa with an instantaneous appearance of a localized fracture consistent with brittle behavior. This is similar to the previous observations in 2D and triaxial press results.

- 6 RAT sample

Fig.18 presents the loading curve for the 6RAT sample

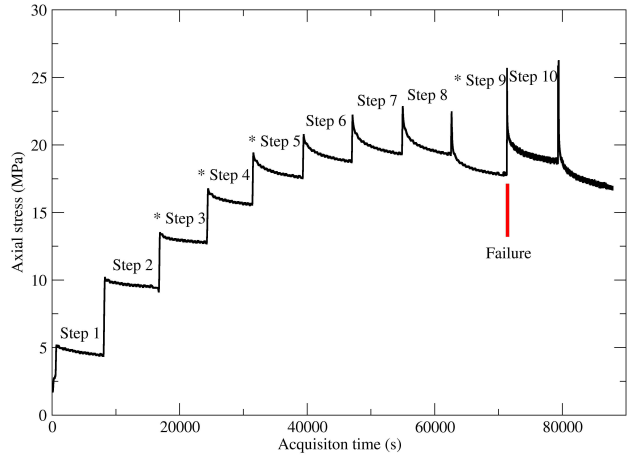


Fig. 18. Loading curve of the test performed on the 6 RAT sample at a confining pressure of 5 MPa. The steps pointed out by a star correspond to ones reported in Fig. 21

The mean deformation at 13 MPa is estimated at 0.1%, it is up to 0.2% at 15 MPa, 0.3% at 20 MPa and 1.6% at 23 MPa. White arrows point to a localization occurring at an early stage of loading and developing in size and intensity (local deformation ranging from 1 % to more than 3 %). The failure is not clearly visible on the loading map and has occurred between step 9 (23 Mpa) and step 10 (25 MPa). The sample has exhibited behavior close to ductile. Fig. proposes an interpretation of the observed discrepancy of failure mechanisms between the intact and 6RAT samples. Whereas the intact sample shows patterns of conventional brittle failure, we suppose that the strong and the highly deformed area is probably a part of a larger undefined band which has not fully developed within the imaged zone. Indeed, we have not be able to find the patterns usually associated to shear bands or compaction bands in sandstone, i.e. localized grain crushing and cataclastic flow surrounded by undamaged zones.

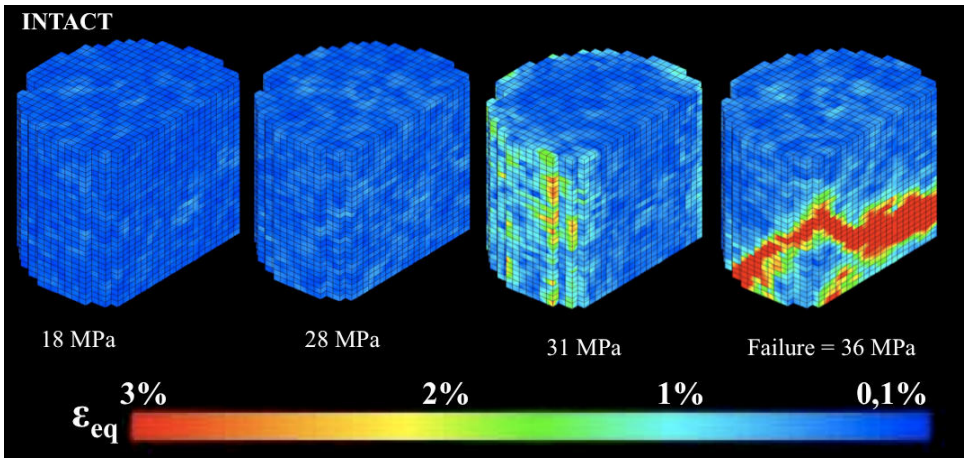


Fig. 19. 3D Equivalent deformation maps obtained for the intact sample subjected to a triaxial compression test at 5MPa of confining pressure. The axial stress level of each presented step is reported in the Fig. 18.

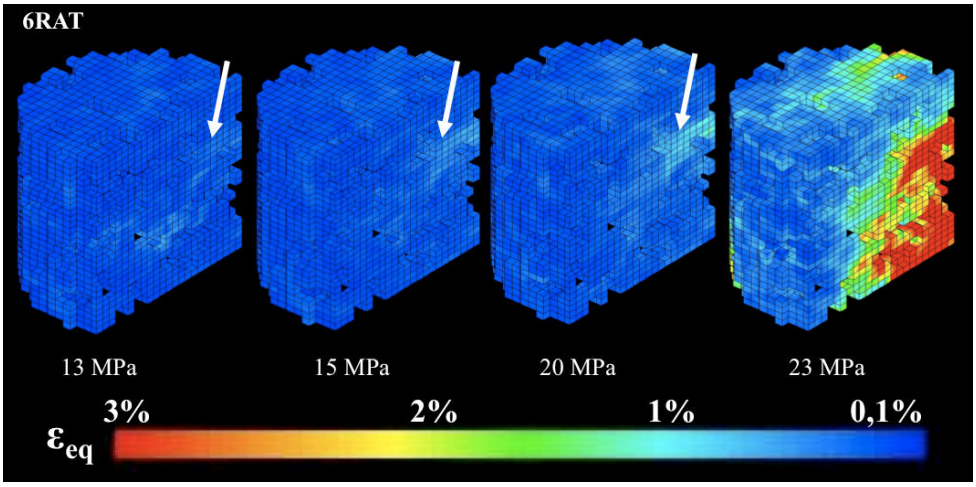


Fig. 20. 3D Equivalent deformation maps obtained for the 6RAT sample subjected to a triaxial compression test at 5MPa of confining pressure. The axial stress level of each presented step is reported in the Fig. 19.

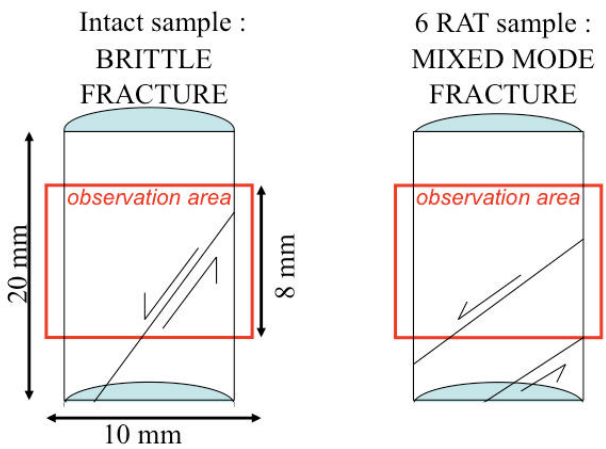


Fig.21. Schematic interpretation of the failure propagation of the intact and 6 RATs samples with respect to the observed area.

CONCLUSIONS

This paper presents an integrated methodology to understand the effects of chemical alteration on the mechanical behavior of a carbonate. Since the microstructure evolutions act as a key parameter on the macroscopic properties of the sample, this methodology is based on a multi-scale analysis combining standard triaxial characterization and recent advances in 2D and 3D Digital Image Correlation techniques.

A systematic study of the alteration effects on the mechanical behavior of a carbonate requires two main precautions:

- The samples should be selected on the basis of their structural homogeneity and in a range of equivalent porosity.
- The alteration should not induce heterogeneities to consider companion samples as Representative Elementary Volumes for mechanical tests.

We have shown that the alteration using a Retarded Acid Treatment leads to an homogeneous sample porosity increase. However, the microstructural evolutions are mostly controlled by the nature of the

grains which may induce local heterogeneous patterns.

The alteration clearly impacts both elastic properties and the failure regime during triaxial compression tests. For a same confining pressure, we notice a shift from a brittle fracture regime to a ductile regime according to the level of alteration.

The impact of the microstructure evolution on macroscopic weakening and mechanical strength has been clearly identified by multi-scale DIC technique. For the first time, we imaged by X-Ray microtomography a compressed carbonate sample in a miniaturized triaxial set-up and used 3D-DIC to interpret the reconstructed volumes. We show different strain accommodation patterns according to the degree of alteration. In uniaxial conditions, intact samples exhibit a diffusive and homogeneous accommodation of the strain before sudden failure propagation. This behavior is mainly due to low deformation at the microstructural scale. Conversely, the altered samples sustain higher deformation levels and exhibit successive strain localization events. At the lower scale, the altered material shows gradual damage characterized by nucleation of microcracks at the grain contacts and their propagation within the grains. The 3D-DIC appears a powerful and promising tool to better understand the micro-mechanisms of strain localization during a triaxial compression test, and in the context of our study, to characterize the change of failure regime with the level of alteration.

REFERENCES

1. Bachu, S., and Adams, J. J. (2003). Sequestration of CO2 in geological media in response to climate change: capacity of deep saline aquifers to sequester CO2 in solution. *Energy Conversion and Management*, *44*(20), 3151-3175.

2. André, L., Audigane, P., Azaroual, M., and Menjoz, A. (2007). Numerical modeling of fluid–rock chemical interactions at the supercritical CO2–liquid interface during CO2 injection into a carbonate reservoir, the Dogger aquifer (Paris Basin, France). *Energy Conversion and Management*, *48*(6), 1782-1797.

3. Egermann, P.,Bemer, E., and Zinszner, B. (2006). An experimental investigation of the rock properties evolution associated to different levels of CO2 injection like alteration processes. Paper SCA 2006-34, *Proceeding of the international Symposium of the Society of core Analysts*, Trondheim, Norway, 12-16

4. Bemer, E., and Lombard, J. M. (2009). From Injectivity to Integrity Studies of CO_2 Geological Storage. *Oil & Gas Science and Technology –*

5. *Revue de l'Institut Français du Pétrole*, *65*(3), 445-459.

6. Adam, J., Urai J.L, B. Wienke, O. Oonken, K. Pfeifer, N. Kukowski, J. Lohrmann, S.Hoth, W. Van Der Zee, J. Schmatz. 2005. Shear localization and strein distribution during tectonic faulting – new insights from granular flow experiments and highresolutionoptical image correlation techniques. *J. Struct. Geol*., 27: 283 – 301.

7. Lenoir, N., M. Bornet, J. Desrues., and G.Viggiani. 2007. Volumetric Digital Image Correlation Applied to X-ray Microtomography Images from Triaxial Compression Tests on Argillaceous Rock. *Strain*. 47:193-205.

8. Louis, L., T.F. Wong, and P. Baud. 2007. Imaging strain localization by X-ray radiography and digital image correlation : Deformation bands in Rothbach sandstone. *J. Structural Geology*. 29:129-140.

9. Dautriat, J., M. Bornert, N. Gland, A. Dimanov, and J. Raphanel. 2011. Localized deformation induced by heterogeneities in porous carbonate analysed by multi-scale digital image correlation: *Tectonophysics*. 503(1-2): 100-116.

10. Sterpenich, J., J. Sausse, J. Pironon, A Géhin, G. Hubert, E Perfetti, and D. Grgic. 2009. Experimental ageing of oolitic limestones under CO2 storage conditions. *Chemical Geology*. 265(1-2): 99-112.

11. Vincent, B., M. Fleury, Y. Santerre and B. Brigaud. 2011. NMR relaxation of neritic carbonates : An integrated petrophysical and petrographical approach. *J. Applied Geophys*. 74 (1): 38-58.

12. Noiriel, C., D. Bernard, P. Gouze, and X. Thibault. 2005. Hydraulic Properties and Microgeometry Evolution Accompanying Limestone Dissolution by Acidic Water. *Science And Technology*. 60(1): 177-192.

13. Bazin, B. 2001. From matrix acidizing to acid fracturing: A laboratory evaluation of acid/rock interactions*: Old Production & Facilities*, 16(1): 22–29.

14. Le Guen, Y., R. Hellmann, M. Collombet, J.P Gratier, E. Brosse, and I. Fran. 2007. Enhanced deformation of limestone and sandstone in the presence of high PCO_2 fluids: *Earth*, 112.

15. Daccord, G., E. Touboul, and R. Lenormand. 1989. Carbonate Acidizing: Toward a quantitative model of the wormholing phenomenon: *SPE production engineering*. 63-68.

16. Zinsmeister, L., J. Dautriat, N. Gland, A. Dimanov, M. Bornert, and J. Raphanel. 2010. Mechanical behavior of an altered reservoir limestone: multi-scale and core analysis approaches. In *Proceedings*

of Society of Core Analysts. Aberdeen, 27 – 30 August 2012.

17. Sutton, M. A., J. J. Orteu, and H. Schreier. 2009. *Image correlation for shape, motion and deformation measurements: Basic Concepts, Theory and Applications.* Springer.

18. Dautriat, J., 2009. Comportement hydromécanique des roches réservoirs sous contraintes: Relations entre évolution de perméabilité et échelles des mécanismes d'endommagement. PhD, Ecole Polytechnique, France.

19. Bourcier, M., M. Bornert, A. Dimanov, E. Héripré, and J. L Raphanel. 2013.Multiscale experimental investigation of crystal plasticity and grain boundary sliding in synthetic halite using digital image correlation. *J. Geophys. Res.* In press.

20. Bornet, M., J. M., Chaix, P. Doumalin, J. C. Dupré, T. Fournel, D. Jeulin, E. Maire, M. Moreaud and H. Moulinec. 2004. Mesure tridimensionnelle de champs cinématique par imagerie volumique pour l'analyse des matériaux et structures. *Photomécanique*. 43-88.

21. Wong, T.-F., C. David, and W. Zhu. 1997. The transition from brittle faulting to cataclastic flow in porous sandstones: Mechanical deformation*: J. Geophy. Res.*, 102(B2): 3009-3025.

22. Zhu, W. 1997. Shear-enhanced compaction in sandstone under nominally dry and water-saturated conditions. *International Journal of Rock Mechanics and Mining*, *34*(364): 3-4.

23. Wong, T.-F., and P. Baud. 2012. The brittle-ductile transition in porous rock: a review. *J. Struct. Geol.* 44: 25-53.