

VARIABILITE DE LA MICROSTRUCTURE D'UN SHALE : CARACTERISATION QUANTITATIVE ET MODELISATION

VARIABILITY IN SPATIAL DISTRIBUTION OF SHALE'S MINERAL PHASES : QUANTITATIVE CHARACTERIZATION AND MODELING

Anne-Laure Fauchille^{1,2,3}, Bram van den Eijnden⁴, Lin Ma¹, Mike Chandler⁵, Kevin Taylor⁵, Kamel Madi⁶, Peter Lee^{1,2}, Ernest Rutter⁵

¹ *Université de Manchester, X-Ray Imaging Facility, School of Materials, The University of Manchester M13 9PL, Angleterre*

² *Research Complex at Harwell, Rutherford Appleton Laboratory, Didcot Oxon OX11 0FA, Angleterre.*

³ *Ecole Centrale de Nantes, Institut de Génie Civil et Mécanique (GeM) MEO, 1 rue de la Noë, Nantes, France.*

⁴ *Faculty of Civil Engineering and Geoscience, Delft University of Technology, Stevinweg 1, 2628 CN Delft, Pays-Bas.*

⁵ *School of Earth and Environmental Sciences, Université de Manchester, Oxford Road, Manchester, M13 9PL, Angleterre.*

⁶ *3Dmagination, Fermi Avenue, Harwell Oxford, Didcot, Angleterre.*

RÉSUMÉ –

La microstructure d'un shale européen a été caractérisée quantitativement et expérimentalement à l'aide d'une mosaïque d'images MEB de l'échelle du µm au mm. Cette caractérisation a permis de quantifier des surfaces d'homogénéisation et d'en déduire un modèle géométrique représentatif de la microstructure, utilisable pour des modélisations en éléments finis au carré.

ABSTRACT – The microstructure of a shale sample was quantitatively characterized by a mosaic of images under a scanning electron microscope. The scales of microstructural heterogeneities were quantified to establish a geometrical model of the microstructure, as representative as possible of the experimental microstructure. This model can be used to predict the microstructural behaviour of shale during various loadings.

1. Introduction

La microstructure des shales est hétérogène de l'échelle du décimètre au nanomètre. Les shales sont des matériaux naturels dits « à microstructure », c'est-à-dire que leur comportement mécanique à l'échelle macroscopique est dépendant du comportement mécanique de leurs composants à des échelles plus petites (échelles de la microstructure), dû en partie à la formation de la roche, à la disposition spatiale et à la variabilité minéralogique des composants (matrice argileuse, quartz, carbonates, micas, matière organique). Malgré la complexité de ce matériau, les enjeux économiques actuels liés au stockage de déchets nucléaires, à l'extraction de gaz naturel ou au stockage de gaz dans des gisements épuisés, ont encouragé les géomécaniciens à caractériser de manière fine sa microstructure pour établir une « microstructure modèle », utilisable pour des simulations numériques, afin d'anticiper le comportement mécanique de la roche à des échelles supérieures. Dans cette étude, une caractérisation quantitative de la microstructure du shale de Bowland (Angleterre) est exposée, afin de proposer un modèle

géométrique représentatif de la microstructure de la roche, utilisable à plus long terme en modélisation numérique.

2. Matériau : le shale de Bowland

Dans cette étude, un échantillon de shale carbonifère de Bowland (Lancashire, Angleterre) a été utilisé. Il provient du forage « Preese-Hall-1 » (Blackpool, North Ouest de l'Angleterre), premier forage européen dédié à la recherche de gisements d'hydrocarbures en réservoir non conventionnel. La profondeur de prélèvement est de 2495.27 mètres. L'échantillon a été fourni par le British Geological Survey (Nottingham, Angleterre). Le shale de Bowland est composé de 5-20% de minéraux argileux (kaolinite, illite), 40-70% de quartz, 5-15% de carbonates et quelques pourcents d'autres minéraux (pyrite, sidérite, muscovite...) (Ma et al., 2016 ; Fauchille et al., 2017). L'échantillon étudié est caractérisé par une texture laminée avec une alternance entre des lamines sédimentaires riches en quartz et pauvres en matière organique, et des lamines plus riches en argiles et matière organique. La teneur moyenne de matière organique est de 1.6 % en masse.

3. Méthodes

3.1. Mosaïque d'images en microscopie électronique à balayage (MEB)

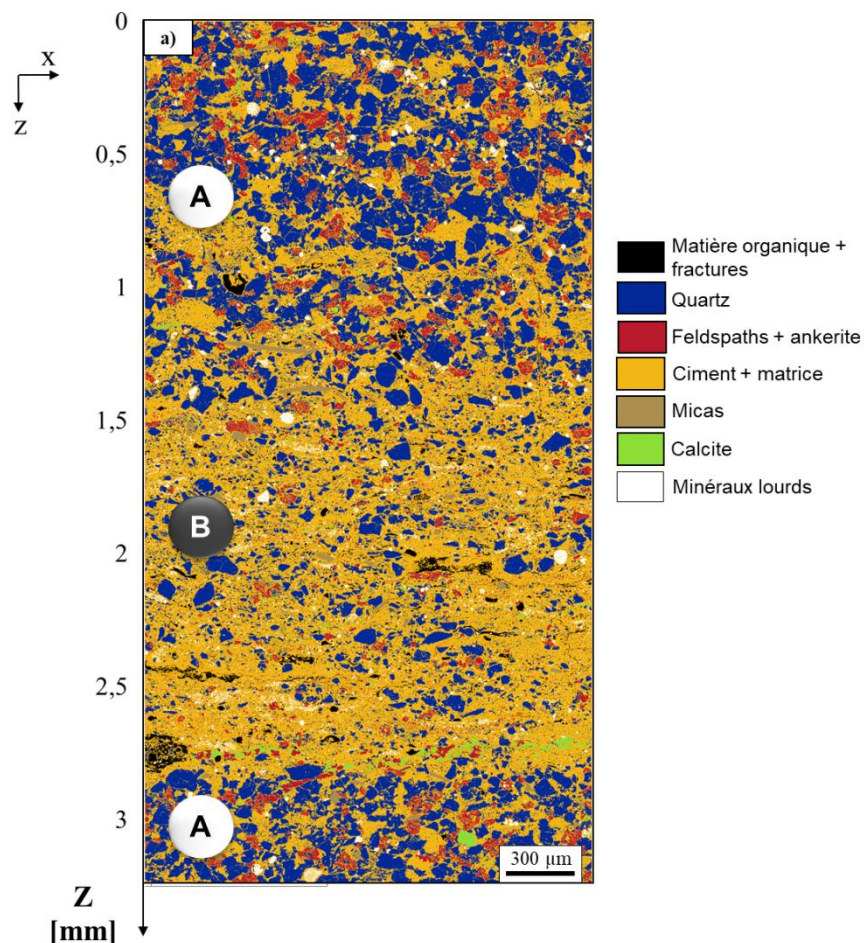


Figure 1: Segmentation des phases minéralogiques à partir de la mosaïque d'images MEB; A désigne la présence d'une lamine pauvre en matière organique et B une lamine riche en matière organique.

La microstructure de l'échantillon a été cartographiée en électrons rétrodiffusés à l'aide d'un microscope électronique à balayage Jeol JSM-6610LV. Une mosaïque de 11x4 images en 8 bit (1280x960 pixels pour une résolution de 0.4 $\mu\text{m}.\text{pixel}^{-1}$) a été acquise avec une distance de travail de 10 mm et un voltage de 20 kV. La mosaïque finale est de 4204x8128 pixels (8bit) et couvre un champ de 1.68x3.25 mm^2 (Figure 1).

Pour obtenir une segmentation fine des phases minéralogiques, les histogrammes de niveaux de gris de la mosaïque ont été uniformisés. En tenant compte du niveau de gris de chaque phase et de la variance locale de niveau de gris sur les images, les éléments suivants ont été segmentés à la résolution de l'étude: les inclusions de quartz, carbonates, feldspaths, micas et minéraux lourds (pyrite), le liant (argile + ciment de quartz), la matrice organique et les fissures.

3.2. Caractérisation quantitative de la microstructure

A partir de la segmentation des phases minéralogiques sur la mosaïque, les distributions des paramètres microstructuraux suivants ont été calculés sur chaque lamine sédimentaire (A et B, Figure 1) : la fraction d'aire (proportion surfacique de phase), la taille (aire), le rapport d'élongation et l'orientation des inclusions rigides à partir d'un plan horizontal (axe x de la mosaïque). Ces paramètres ont été calculés avec le logiciel ImageJ et par des codes développés en Visual Studio C++. Seules les inclusions dont l'aire est supérieure à 10 pixels ont été prises en compte, afin d'éviter les artefacts de résolution.

3.3. Estimation des échelles d'homogénéisation

Plusieurs méthodes existent pour déterminer des échelles d'hétérogénéité ou longueurs de corrélation, par exemple : la méthode de la « counting-box » (Vandenbyggart et al., 1999), la covariance (Houben et al., 2014), la mesure d'entropie (Boger et al., 1992), la longueur de percolation (Cosenza et al., 2015) et la mesure de dispersion (Kanit et al., 2003 ; Keller et al., 2013). Cette dernière a été choisie pour cette étude. Cette approche, introduite par Kanit et al., (2003) en statistiques, consiste à diviser une image 2D en sous-images, appelés ici domaines, afin de quantifier la variance d'un paramètre donné caractérisant ces sous-images. Elle a pour but de déterminer le nombre de réalisations N possibles (nombre d'échantillons) et sa surface, pour une erreur relative choisie de ce paramètre (et inversement).

Les lames de la mosaïque ont été divisées en domaines D carrés indépendants de 10x10 à 3302x3302 pixels, soit 4x4 μm^2 à 1.32x1.32 mm^2 , respectivement. La taille de la mosaïque étant limitée, le nombre de D diminue lorsque sa taille augmente.

La proportion surfacique P de phase minéralogique a été le paramètre choisi pour calculer les échelles représentatives de la microstructure. Pour comparer les valeurs de proportion de phase dans les domaines, l'écart-type σ_D de P pour un domaine D donné a été calculé avec la formule suivante (Equation 1) :

$$\sigma_P = \sqrt{\frac{\sum (P_D(x, z) - \bar{P}_D)^2}{N_D}} \quad (1)$$

A partir des valeurs de σ_P , l'erreur relative de P pour un D donné est calculée (Equation 2):

$$\varepsilon_{rel}(D) = \frac{2\sigma_P(D)}{\bar{P}\sqrt{N}} \quad (2)$$

3.4. Elaboration d'un modèle géométrique de la microstructure

Un modèle simple basé sur les diagrammes de Voronoï a été utilisé pour reproduire la géométrie de la microstructure du shale de Bowland (Sellers and Napier, 1997; Fan et al., 2004; van den Eijnden et al., 2015, 2017). Les propriétés microstructurales prises en compte sont la proportion surfacique de phase et les distributions de l'élongation et de l'orientation des grains, déterminées expérimentalement, pour reproduire l'anisotropie structurale de la roche (Figure 2). Le modèle applique la tessellation de Voronoï sur un ensemble de points générés aléatoirement. Les orientations et élongations des grains sont intégrées au modèle en étirant les domaines durant la tessellation, par des coefficients déterminés à partir des distributions expérimentales.

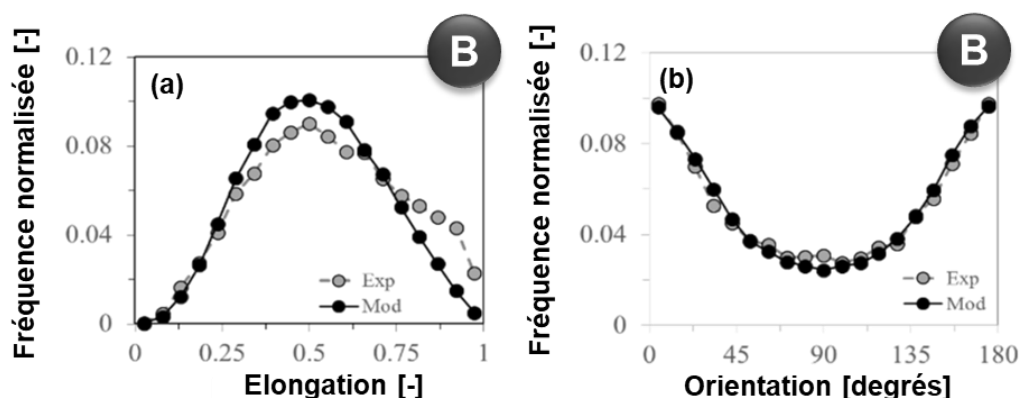


Figure 2: Comparaison des distributions de (a) l'élongation et de (b) l'orientation des grains calculées expérimentalement à partir de la segmentation de la mosaïque (en gris) et à partir des grains générés par le modèle (en noir), pour la lamine B.

Une série de 100 modèles géométriques de microstructure a été générée pour chaque lamine sédimentaire.

Pour plus de détails, le lecteur pourra se référer aux publications de van den Eijnden et al., (2016, 2017) et van den Eijnden (2015).

4. Résultats

4.1. Surfaces d'homogénéisation

Les valeurs des SER de la lamine organique (B) ont été calculées pour 1, 5 et 10 réalisations et pour une erreur relative sur la proportion de phase de 10% (Tableau 1).

Lamine organique B	Surfaces élémentaires représentatives (mm) pour $\varepsilon_{rel}=0.1$		
	$N=1$	$N=5$	$N=10$
Matière organique + fractures	8.94	2.63	1.55
Quartz	7.75	1.80	0.96
Feldspaths + carbonates	1.62	0.66	0.45
Ciment + matrice	0.449	0.122	0.070
Micas	7.35	2.47	1.54
Minéraux lourds	4.28	1.37	0.838

Tableau 1: Surfaces élémentaires représentatives calculées avec la méthode de dispersion et pour chaque phase minéralogique en considérant 1, 5 et 10 réalisations et une erreur relative sur la proportion de phase de 0.1 (10%).

Pour une réalisation ($N=1$), c'est-à-dire une seule mosaïque, la surface de la lamine organique est représentative lorsqu'elle est supérieure ou égale à $8.94 \times 8.94 \text{ mm}^2$ pour la matière organique et les fractures, $7.75 \times 7.75 \text{ mm}^2$ pour les inclusions de quartz, 1.62×1.62

mm² pour les feldspaths et carbonates, etc... Or la surface utilisée pour déterminer les paramètres géométriques du modèle de microstructure est de $1,76 \times 1,32$ mm². D'après le tableau 1, cette surface, ne constituant qu'un seul échantillon (N=1) serait représentative de la proportion de phase avec une erreur relative de 0,1 uniquement pour les feldspaths, carbonates, ciment et matrice et non pour la matière organique, les fractures, quartz, micas et minéraux lourds. Pour 5 et 10 réalisations, les valeurs des SER sont de l'ordre du millimètre et acceptables pour des échantillons préparés en laboratoire.

4.2. Modèle géométrique de microstructure

Les distributions expérimentales de l'élongation et de l'orientation, ainsi que la fraction surfacique des phases minéralogiques de la lamine organique B ont permis d'établir un modèle géométrique de sa microstructure (Figure 3).

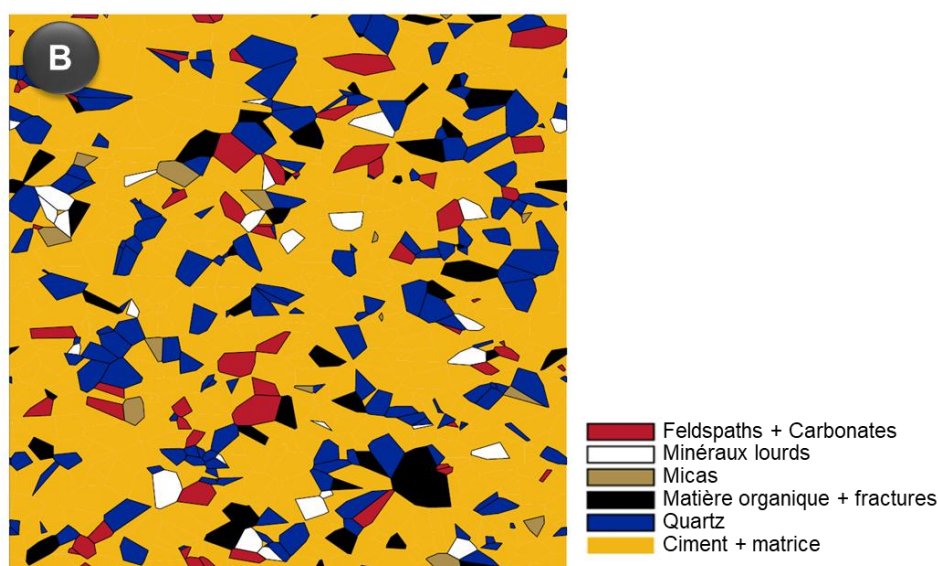


Figure 3: Modèle géométrique de la microstructure d'une lamine sédimentaire riche en matière organique du shale de Bowland.

Le modèle numérique de microstructure n'a théoriquement pas d'échelle. Cependant, les shales sont des matériaux multi-échelle dont les composants et les propriétés sont très variés de l'échelle microscopique à macroscopique. Définir une échelle est donc important pour identifier l'échelle de microstructure modélisée. L'échelle représentée ici est l'échelle mésoscopique, c'est-à-dire que les grains (inclusions rigides) sont inclus dans un liant (jaune sur la figure 3), ici constitué à la fois de ciment quartzitique et de matrice argileuse. Dans le shale de Bowland, la formation d'un ciment de quartz est un phénomène tardif, postérieur au dépôt sédimentaire (Fauchille et al., 2017).

Chaque modèle est constitué de 1000 cellules. Les cellules du liant ont été rassemblées en une seule. Connaissant la taille moyenne des grains de la lamine organique, l'échelle correspondant au modèle de la figure 3 est d'environ 400x400 µm.

5. Conclusion

La microstructure d'un échantillon laminé de shale de Bowland a été caractérisée quantitativement à l'aide d'une mosaïque d'images MEB en haute résolution. Cette caractérisation a permis d'utiliser la méthode de dispersion pour quantifier des surfaces élémentaires représentatives de la proportion surfacique des phases minéralogiques d'une lamine sédimentaire, pour une erreur relative de 0,1. Pour un seul échantillon, ces

surfaces sont assez larges et supérieures à quelques millimètres, ce qui rend difficile leur observation simultanée en microscopie. Cependant, en répétant l'observation plusieurs fois sur plusieurs échantillons, les valeurs de SER diminuent et sont de l'ordre de plusieurs centaines de μm , acceptables pour des échantillons préparés en laboratoire. Enfin, à partir de la caractérisation quantitative de la microstructure de l'échantillon (proportion de phase, élongation, orientation), des modèles de la géométrie de la microstructure à l'échelle mésoscopique ont été établis. A plus long terme, ces modèles ont pour but de simuler le comportement mécanique micro-macro du shale de Bowland, en utilisant la méthode des éléments finis au carré.

6. Remerciements

Ce travail a été financé en partie par les fonds UK-NERC (NE/M001458/1) et le projet européen Horizon 2020 716 ShaleXenvironment (grant no. 640979).

7. Références bibliographiques

- Boger, F., Feder, J., Jossang, T. and Hilfer, R. (1992). Microstructural sensitivity of local porosity distributions. *Physica A: Statistical Mechanics and its Applications*, 187 (1-2), pp. 55-70.
- Cosenza, P., Prêt, D. and Zamora, M. (2015). Effect of the local clay distribution on the effective electrical conductivity of clay rocks. *Journal of Geophysical research: solid Earth*, 120(1), pp. 145-168.
- Fan, Z., Wu, Y., Zhao, X. and Lu, Y. 2004. Simulation of polycrystalline structure with Voronoi diagram in Laguerre geometry based on random closed packing of spheres. *Computational Materials Science*, 29(3), pp. 301-308.
- Fauchille, A.L., Ma, L., Rutter, E., Chandler, M., Lee, P.D. and Taylor, K.G. (2017). An enhanced understanding of the Basinal Bowland shale in Lancashire (UK), through microtextural and mineralogical observations. *Marine and Petroleum Geology*, 86, pp. 1374-1390.
- Houben, M.E., Desbois, G. and Urai, J.L. (2014). A comparative study of representative 2D microstructures in Shale and Sandy facies of Opalinus Clay (Mont Terri, Switzerland) inferred from BIB-SEM and MIP methods. *Mar. Pet. Geol.* 49, pp. 143–161.
- Kanit, T., Forest, S., Galliet, I., Mounoury, V. and Jeulin, D. (2003). Determination of the size of the representative volume element for random composites: statistical and numerical approach. *International Journal of solids and structures*, 40(13), pp. 3647-3679.
- Keller, L.M., Holzer, L., Schuetz, P. and Gasser, P. (2013). Pore space relevant for gas permeability in Opalinus clay: Statistical analysis of homogeneity, percolation, and representative volume element. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, 118, 2799-2812.
- Klaver, J., Desbois, G., Urai, J.L. and Littke, R. (2012). BIB-SEM study of the pore space morphology in early mature Posidonia Shale from the Hils area, Germany. *International Journal of Coal Geology*, 982 (103), pp. 12-25.
- Ma, L., Taylor, K.G., Lee, P.D., Dobson, K.J., Dowey, P.J. and Courtois, L. (2016). Novel 3D centimetre-to nano-scale quantification of an organic-rich mudstone: The Carboniferous Bowland Shale, Northern England. *Marine and Petroleum Geology*, 72, pp. 193-205.
- Sellers, E. and Napier, J. 1997. A comparative investigation of micro-flaw models for the simulation of brittle fracture in rock. *Computational mechanics*, 20(1), pp. 164-169.

- van den Eijnden, A.P. (2015). Multiscale modelling of the hydromechanical behaviour of argillaceous rocks. PhD thesis, University of Grenoble-Alpes, France.
- van den Eijnden, A.P., Bésuelle, P., Chambon, R. and Collin, F. (2016). A FE 2 modelling approach to hydromechanical coupling in cracking-induced localization problems. *International Journal of Solids and Structures*, 97, pp. 475-488.
- van den Eijnden, A.P., Bésuelle, P., Collin, F., Chambon, R. and Desrues, J. (2017). Modeling the strain localization around an underground gallery with a hydro-mechanical double scale model; effect of anisotropy. *Computers and Geotechnics*, 85, pp. 384-400.
- VandenBygaart, A.J. and Protz, R. (1999). The representative elementary area REA in studies of quantitative soil micromorphology, *Geoderma*, 89, pp. 333-346.