

Identification tridimensionnelle du réseau poreux d'une argile par imagerie FIB-MEB

Fares BENNAI, Mahdia HATTAB, Yanzheng DING, Mohamad JRAD, Julien GUYON

Université de Lorraine, CNRS, Arts et Métiers ParisTech, LEM3, F-57000 Metz, France

RESUME L'objectif de cet article est de proposer une nouvelle approche permettant d'étudier en 3D la variation des propriétés des pores d'une argile saturée et remaniée en lien avec le chargement mécanique. Un chargement oedométrique a été appliqué à un échantillon d'argile reconstituée jusqu'à un certain niveau de contrainte. Une observation post-mortem utilisant la microscopie électronique à balayage (MEB) couplée à un faisceau ionique focalisé (FIB) a été utilisée pour observer un micro-volume de l'échantillon permettant de visualiser la structure 3D de la microstructure. Une reconstruction du micro-volume a été réalisée en utilisant une nouvelle méthode de traitement, dans laquelle l'intelligence artificielle est intégrée pour la segmentation des pores. Ainsi, les propriétés de l'espace poral peuvent être quantifiées. La distribution de la taille des pores est ensuite comparée avec les résultats donnés par la porosimétrie au mercure.

Mots-clefs observations FIB-MEB, pores, apprentissage automatique, chargement oedométrique.

I. INTRODUCTION

Le phénomène de transport dans les milieux argileux est l'un des points essentiels qui doit être pleinement compris dans les problèmes d'ouvrages géotechniques. On peut citer parmi les applications les barrières ouvragées, le stockage de déchets toxiques, mais aussi les phénomènes de retrait/gonflement ou plus globalement les problématiques liées à la présence d'eau dans les sols. La structure poreuse et les propriétés minéralogiques des particules d'argile et leur évolution lors d'un chargement mécanique et/ou hydrique jouent un rôle important dans la maîtrise des ouvrages qui les contiennent.

La complexité du comportement mécanique de l'argile a été mise en évidence depuis longtemps dans de nombreux travaux de la littérature, en particulier la manière dont la microstructure varie avec le chargement mécanique (Collins et McGown 1974; Delage et Lefebvre 1984; Hicher et al. 1994; Bai et Smart 1997; Hicher et al. 2000; Hattab et Fleureau 2011). Différentes techniques ont été développées dans le but de caractériser les propriétés microstructurales des argiles, comme par exemple la porosimétrie au mercure qui permet d'obtenir une distribution de la taille des pores (Delage et Lefebvre 1984; Hattab et al. 2013), et la microscopie électronique à balayage (MEB), une technique d'investigation courante pour identifier l'organisation microstructurale de la matrice argileuse. Liu et al. (2011) ont développé une technique permettant de convertir les pores en une forme vectorielle à partir de pixels pour représenter des lignes droites permettant de tracer la frontière des pores et d'estimer leurs paramètres géométriques. Ainsi, trois paramètres statistiques peuvent être introduits pour identifier les propriétés des pores en termes de surface, de variation de forme et d'orientation. D'autres méthodes de quantification ont été utilisées telles

que la théorie fractale de Qinghui et al. (2016) qui détermine les orientations des pores, ou encore la technique développée par Gao et al. (2020b) et Zhao et al. (2020) permettant d'isoler chaque pore et de le représenter par une ellipse puis calculer ses paramètres morphologiques. Hammad et al. (2013) et Cotecchia et al. (2016), et plus récemment Zhao et al. (2020) et Gao et al. (2020b) ont montré que la réponse au chargement mécanique impacte fortement la forme et l'orientation des micropores eux-mêmes influencés par l'évolution des orientations des particules (Gao et al. 2020a).

Ces études ont apporté d'importantes contributions à la relation entre les mécanismes de déformation et les changements à l'échelle de la microstructure. Toutes ces approches basées sur la technique d'observation par MEB sont souvent réalisées sur des surfaces planes identifiées dans l'échantillon, ce qui représente une forte limitation. L'analyse proposée dans cet article combine l'imagerie FIB-MEB et un traitement d'images adapté. Cette approche permet une reconstruction en 3D de la texture de l'argile. L'objectif est de caractériser en 3D les propriétés morphologiques du réseau poreux et leurs évolutions en lien avec le chargement mécanique.

II. MATERIAUX ET METHODES

A. Propriétés des matériaux

Dans cette étude, une argile de type Kaolin K13 (commercialisée par Sibelco, France) est utilisée. L'analyse par diffraction des rayons X révèle une grande proportion de kaolinite (plus de 90%), du quartz (moins de 10%), et des traces d'illite.

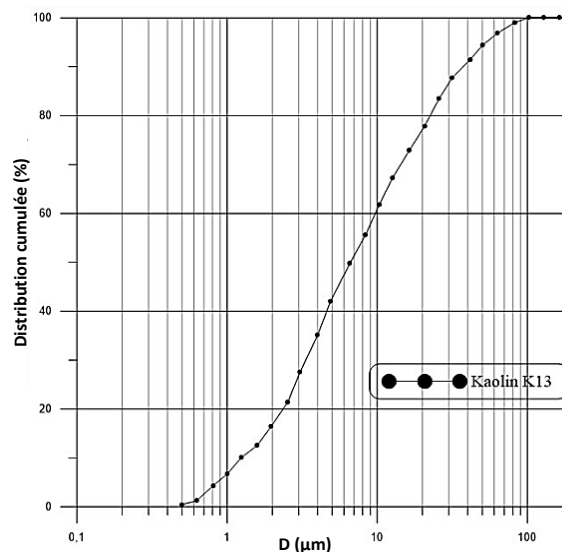


Figure 1. Distribution granulométrique du Kaolin K13 (Cheng 2020)

Les paramètres géotechniques, qui ont été déterminés selon les essais normalisés (NF EN ISO 17892-12 et NF EN ISO 11508), sont les suivants : limite de liquidité $w_L = 42\%$, limite de plasticité $w_P = 21\%$ et la densité des grains solides $\gamma_s / \gamma_w = 2,63$. La poudre argileuse est d'abord mélangée à de l'eau distillée pour obtenir une boue, dont la teneur en eau w_0 est de $1,5w_L$. Cette boue est introduite dans une cellule œdométrique. La distribution de la taille des particules du Kaolin K13,

réalisée par granulométrie laser, est représentée dans la figure 1. Le résultat montre que les tailles moyennes des grains et des particules du Kaolin K13 se situent dans la plage de 2,5 μm à 20 μm .

B. Chargement œdométrique

L'état de contraintes œdométriques est tel que les déformations radiales ($\varepsilon_r = \varepsilon_2 = \varepsilon_3$) sont empêchées, d'où la déformation volumique $\varepsilon_v = \varepsilon_1$. La contrainte axiale effective est σ'_1 et notée σ'_v tandis que les contraintes radiales effectives sont $\sigma'_2 = \sigma'_3 = \sigma'_r$.

Le tableau 1 donne les différents niveaux de chargements appliqués ainsi que les paramètres des essais. L'indice des vides initial est appelé e_{0i} , il est déduit de la teneur en eau initiale. L'indice des vides final mesuré à la fin de l'essai est appelé e_f .

TABLEAU 1. Paramètres des différents essais œdométriques réalisés

Nom de l'échantillon		État initial	σ'_v (kPa)	e_{0i} Indice des vides initial	e_f Indice des vides final
Niveau de chargement	oed_600 kPa	Boue	600	1.600	0.856
	oed_1000 kPa		1000	1.608	0.806
	oed_3000 kPa		3000	1.503	0.769

La figure 2 montre la variation de l'indice des vides (e) en fonction de la contrainte verticale effective (σ'_v). On en déduit l'indice de compression $C_c = 0,293$ et l'indice de gonflement $C_s = 0.084$. La corrélation établie par Biarez et Hicher (1994) $C_c = 0,009 (w_L - 13)$, suggère un indice de compression $C_{c_correlation} = 0,261$, ce qui est concordant avec l'indice de compression observé dans les essais de la présente étude. La corrélation de Biarez et Hicher propose également $C_c/C_s = 4$, ce qui donne une valeur surestimée par rapport aux résultats des essais qui donnent $C_c/C_s = 2,9$.

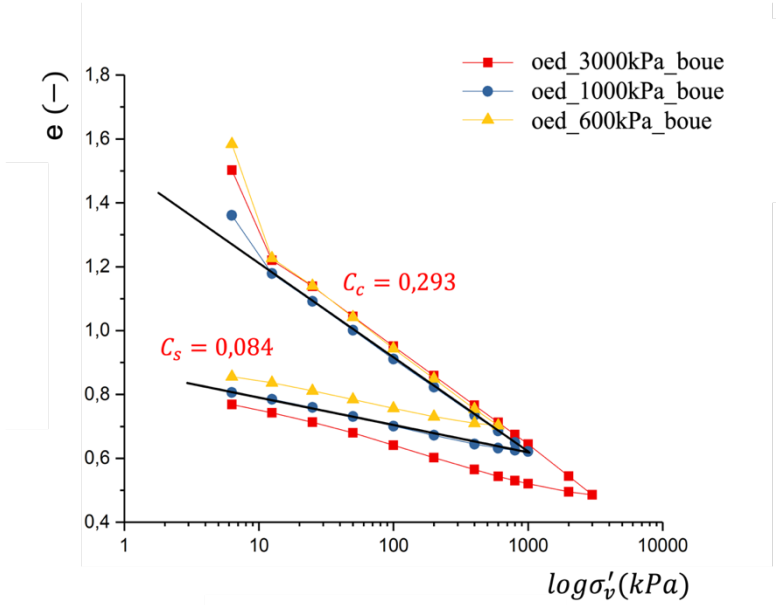


Figure 2. Variation de l'indice des vides en fonction de la contrainte verticale effective

C. Préparation des échantillons pour l'observation de la microstructure

La préparation des échantillons suit les étapes suivantes : après l'essai mécanique, un petit-échantillon parallélépipédique de dimensions 15 mm $\times$ 5 mm $\times$ 5 mm est découpé dans

l'éprouvette originale ayant subi le chargement mécanique, en utilisant un fil coupe beurre. Les observations FIB nécessitent que le petit-échantillon soit complètement sec aussi un processus de lyophilisation adaptée a été utilisé permettant d'éliminer l'eau interstitielle par sublimation. Ce protocole proposé par Delage et al. (1982) et Delage et Pellerin (1984) préserve et maintient intacte la structure argileuse avant les observations microscopiques. Une fracture a été réalisée après congélation de façon à faire apparaître une surface dont la structure est maintenue intacte. Ainsi, le petit-échantillon obtenu après fracture de dimensions $7,5 \text{ mm} \times 5 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$ est fixé sur un support et sa surface a été métallisée avec de la poudre de carbone et d'or. Le petit-échantillon est ensuite introduit dans la chambre du microscope pour des observations couplées FIB-MEB. Le petit échantillon est référencé par rapport à l'axe de la contrainte verticale de compression unidimensionnelle. L'axe Z est parallèle à l'axe de la contrainte (figure 3). Le plan XY constitue le plan de la surface de l'échantillon métallisée et il est perpendiculaire à l'axe de la contrainte unidimensionnelle.

D. Dispositif FIB-MEB

Le microscope FIB/SEM à double faisceau se compose d'un instrument Faisceau d'Ion Focalisé (FIB) qui permet l'utilisation d'un faisceau d'ions finement focalisé pour l'abrasion précise et locale de la matière, ainsi que d'une colonne où des électrons sont générés, accélérés et contrôlés à l'aide de lentilles électromagnétiques pour l'imagerie. Le porte-échantillon doit être incliné de 52° (figure 3) afin que le faisceau d'ions frappe l'échantillon selon un angle parallèle au plan d'imagerie (plan YZ) qui est correctement référencé dans le petit-échantillon à observer (Ding et al. 2023). Le faisceau d'ions est utilisé pour couper des couches nanométriques de 10 nm. Après chaque découpe, l'image de la surface obtenue est enregistrée via le MEB. Cette collecte d'image se déplace pas à pas dans une direction de la découpe (axe X) avec une acquisition systématique d'images. La résolution de l'image est fixée de façon à obtenir un voxel cubique de taille de $10 \text{ nm} \times 10 \text{ nm} \times 10 \text{ nm}$.

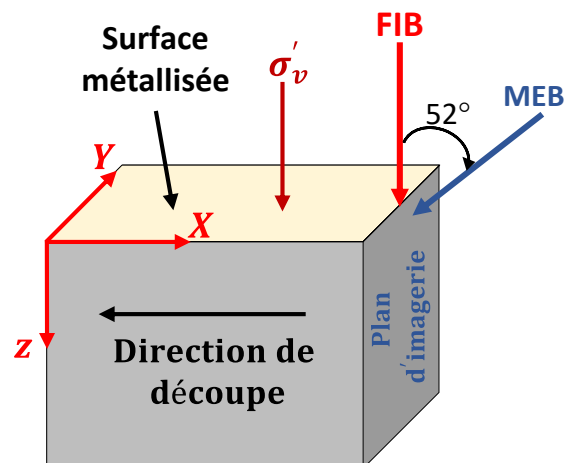


Figure 3. Principe de la technique d'observation FIB -MEB

Dans le détail, il est nécessaire de réaliser une extraction d'un micro-volume avant l'acquisition comme montrée sur la figure 4. Cette étape requiert l'utilisation du faisceau ionique pour la découpe de la matière ainsi qu'un micromanipulateur pour l'extraction. Cette opération est

particulièrement délicate car la perte du micro-volume est fréquente. Par la suite, l'observation 3D est réalisée uniquement sur le micro-volume extrait de l'échantillon.

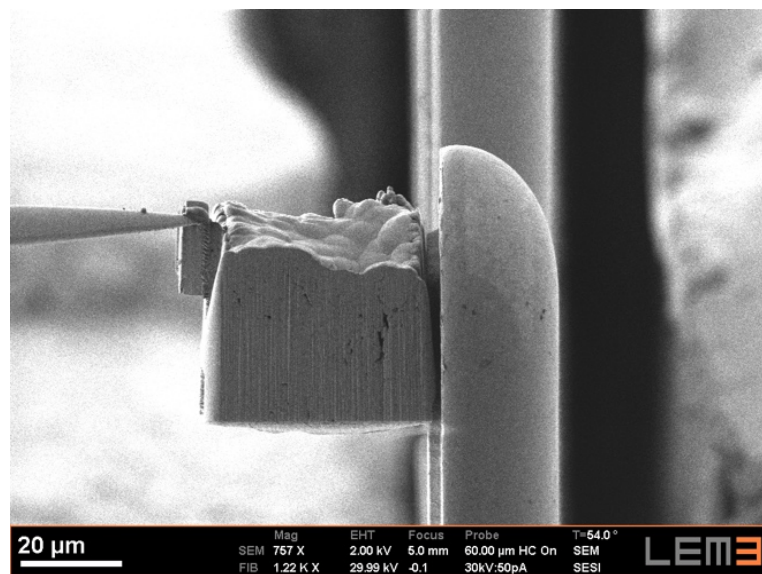


Figure 4. Extraction du micro-volume d'argile

Quant à l'acquisition d'images, parallèlement au faisceau FIB qui avance à une vitesse requise pour couper des tranches nanométriques, une acquisition synchronisée est réalisée sur chaque plan tranché. Une pile d'images (environ 3000 images) est obtenue ce qui permet de reconstruire le micro-volume en 3D dans une version digitale. Les dimensions de ce volume reconstruit sont de $38 \mu\text{m} \times 35 \mu\text{m} \times 45 \mu\text{m}$. Pendant cette acquisition, des corrections automatiques ont été effectuées, ce qui garantit une acquisition d'images de bonne qualité. Ces corrections peuvent être multiples : correction de mise au point, correction d'astigmatisme d'une image focalisée et une nouvelle mise au point peut être indispensable après la correction d'astigmatisme. La durée de l'observation, y compris l'extraction du micro-volume et l'acquisition, est de 4 à 5 jours.

III. NOUVELLE METHODE DE TRAITEMENT D'IMAGES POUR L'IDENTIFICATION DU RESEAU PORAL

La méthode de traitement d'image proposée nécessite trois étapes : l'étape d'alignement, l'étape de segmentation et l'étape d'individualisation.

1- Etape d'alignement : Lors de l'acquisition des images, une distorsion peut apparaître puis transmise au micro-volume digital reconstruit en 3D. Cette étape permet de corriger le désalignement des tranches (figure 5).

L'alignement primaire consiste d'abord à effectuer une transformation de bloc rigide des images fortement déformées (zones très désalignées), puis pour les zones légèrement déformées (zones peu désalignées) une translation des images peut s'avérer utile. D'autres problèmes surviennent couramment après cette étape d'alignement qui engendre des problèmes de transvection. Dans ce cas, un alignement secondaire est appliqué pour effectuer la correction.

2- Etape de segmentation : Cette étape a nécessité le développement d'une nouvelle méthode de segmentation basée sur l'apprentissage IA, car les particules d'argile (solides) doivent être efficacement séparées des pores.

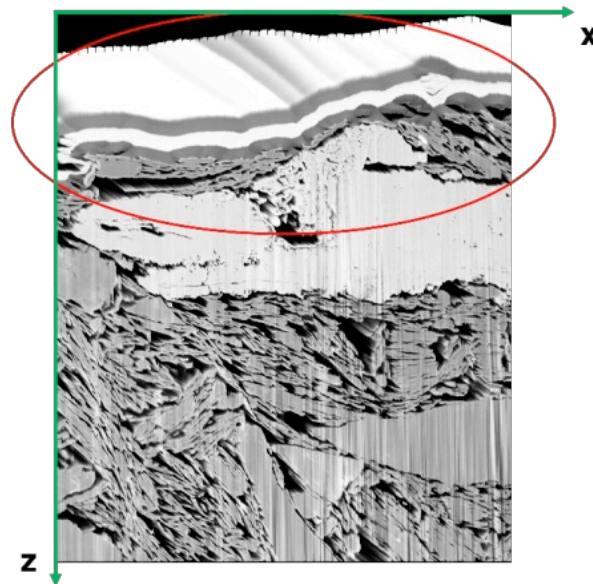


Figure 5. Désalignement de la pile d'images après l'acquisition.

On peut observer sur la figure 6a le micro-volume digital reconstruit avec la méthode développée. La figure 6b montre de son côté le réseau de pores à l'intérieur du micro-volume reconstruit après application de la méthode de segmentation.

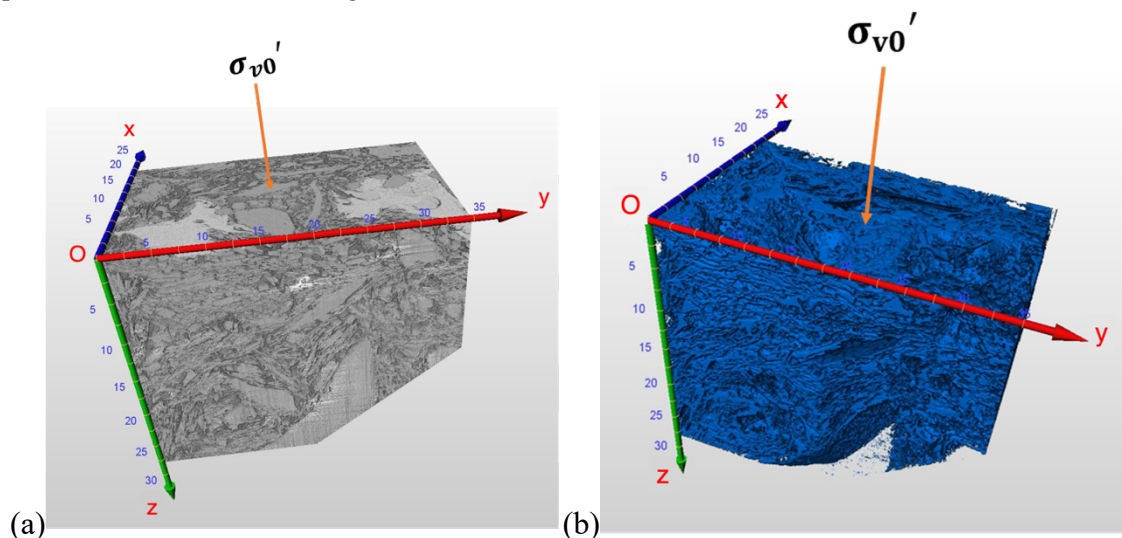


Figure 6. Micro-volume reconstruit avant et après la segmentation des pores

3- Etape d'individualisation : cette étape utilise un algorithme de watershed avec marqueurs (ME) dont l'objectif est de caractériser précisément les contours des pores. Différentes valeurs du paramètre marqueurs (ME) ont été testées sur plusieurs zones du micro-volume digital pour optimiser la précision de cette individualisation. L'analyse a conduit à la valeur optimale de ME = 8, ce qui permet d'obtenir une reconstitution réaliste des pores. Les résultats sont donnés en figure 7 où l'individualisation est présentée par un code couleur. Chaque zone colorée représente un

pore isolé. En d'autres termes, deux zones voisines colorées différemment représentent deux pores distincts. Cette étape d'individualisation permettra ensuite de caractériser les propriétés des pores à travers une approche quantitative.

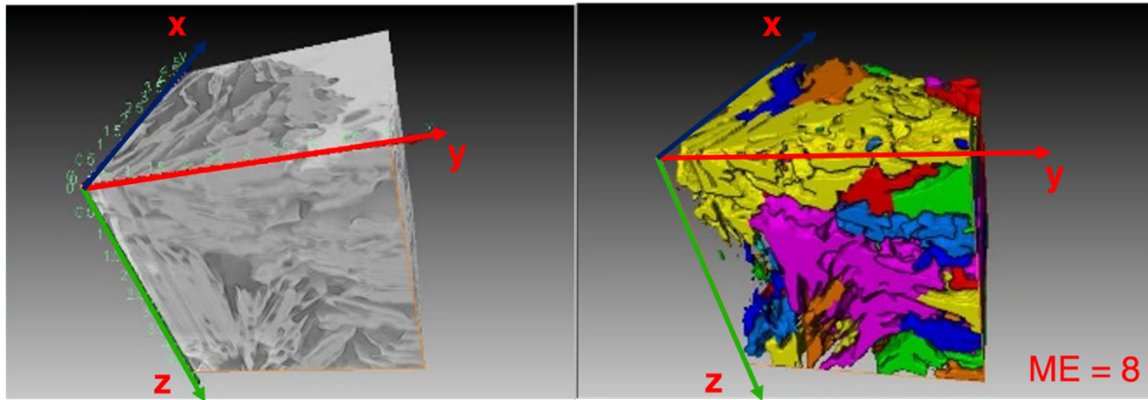


Figure 7. Exemple d'individualisation des pores (volume : 5 μm x 5 μm x 5 μm)

4- Etape d'identification des propriétés des pores : Après l'étape d'individualisation, chaque pore est représenté par une ellipsoïde définie par ses axes, le demi-axe principal noté L , le demi-axe intermédiaire noté I et le demi-axe mineur noté S . La morphologie du pore peut ainsi être définie à partir de deux paramètres, le flatness f et l'élongation e^* . Le flatness (ou planéité) est le rapport entre S et I soit $f = S/I$. Cette valeur varie entre 0 et 1, ce qui signifie que plus f est petit plus le pore est aplati. L'élongation des pores notée e^* représente le rapport entre I et L . Là encore, la valeur de $e^* = I/L$ est comprise entre 0 et 1 ce qui veut dire que les pores allongés ont une faible valeur de e^* .

L'orientation des pores en 3D est définie dans le repère sphérique par la colatitude φ , variant entre $[0^\circ \text{ et } 90^\circ]$ et la longitude θ , variant entre $[0^\circ, 360^\circ]$.

IV. RESULTATS ET DISCUSSIONS

La figure 8 représente les résultats d'un couplage entre f et e^* . On observe un nuage dense de points concentrés sur la zone des pores allongés et aplatis. Cette forme est due à la compression des pores avec le chargement œdométrique, et les pores prennent une forme lamellaire.

Les résultats de la distribution de la taille des pores obtenus par l'observation FIB-MEB ont été comparés à ceux de la porosimétrie par intrusion de mercure (PIM) obtenus par Hammad (2010) sur le même matériau. La figure 9 montre que le diamètre des pores estimé par la technique FIB-MEB se situe entre 0,04 et 4 μm , alors que le diamètre des pores mesuré par la technique PAM se situe dans un intervalle plus large entre 0,005 et 440 μm . Cette différence entre les deux méthodes est due aux échelles différentes accessibles aux deux techniques d'observation. Une autre différence concerne la porosité non connectée pouvant être visualisée par FIB-MEB, puisqu'elle se situe à une échelle de mesure adaptée à la technique FIB-MEB, mais inaccessible au mercure.

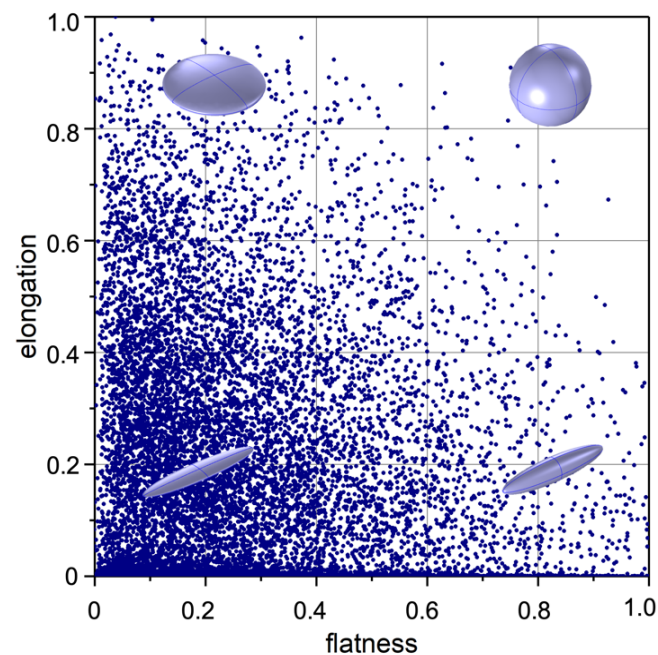


Figure 8. Forme des pores après chargement œdométrique à $\sigma'_v = 1000$ kPa

Les résultats montrent un décalage vers la droite des courbes de distribution de taille de pores obtenues par FIB-MEB et par PIM après chargement œdométrique à 1000 kPa, comparé aux courbes après une compression unidimensionnelle à $\sigma'_v = 120$ kPa. On observe que le diamètre moyen diminue de 2,06 μm à 1,86 μm en FIB-MEB ce qui indique une compression des pores avec l'augmentation du niveau de contrainte. Cette compression des pores amène à des formes de type lamellaire, comme on le voit clairement sur la figure 8.

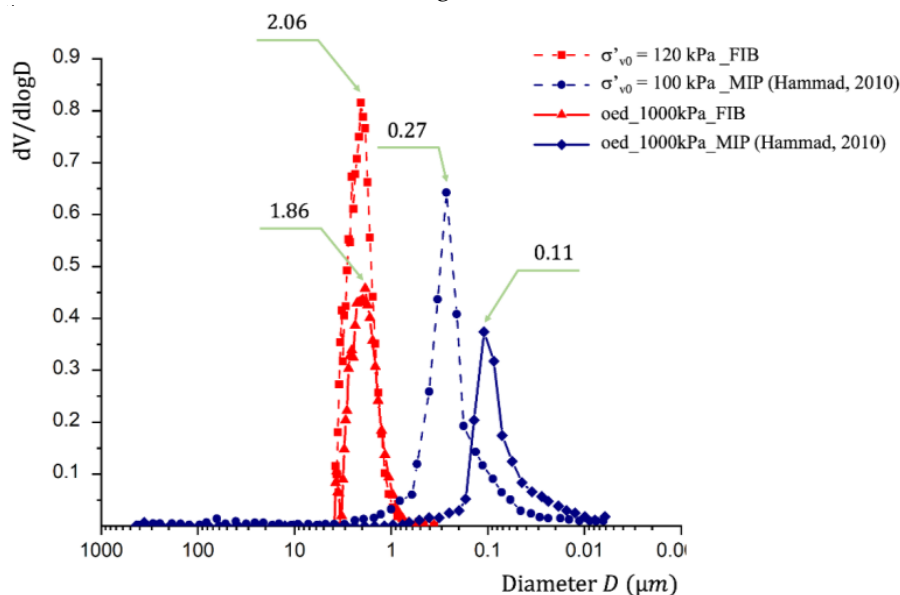


Figure 9. Distribution de la taille des pores obtenue par FIB-MEB et la porosimétrie au mercure

L'orientation des pores dans l'espace est représentée dans la figure 10 dans un repère global sous forme de dôme. Dans cette représentation chaque graduation représente un pas de 10° des angles

θ et φ , ce qui implique 324 graduations au total représentant 100% de possibilités dans la répartition des orientations des pores.

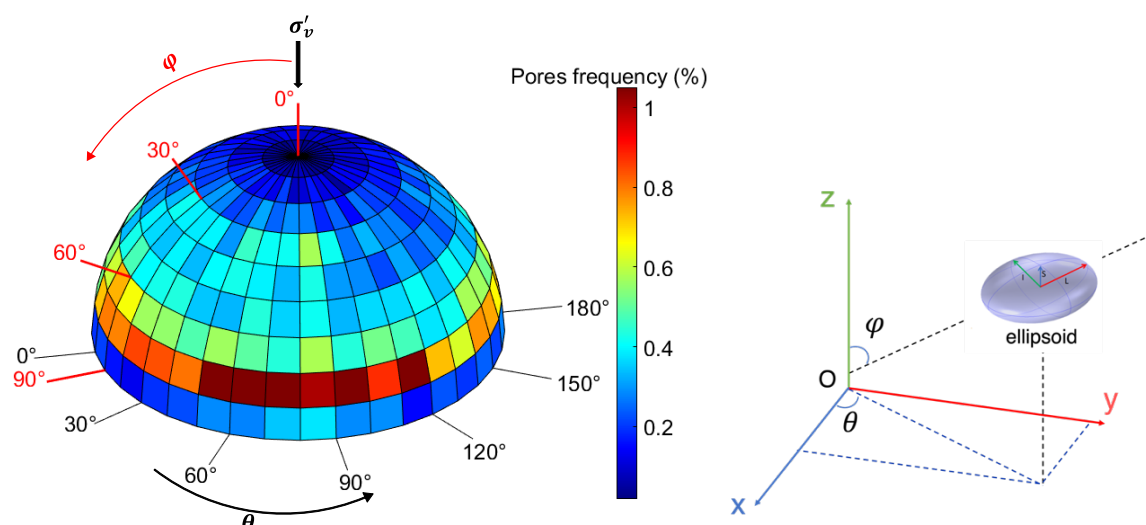


Figure 10. Orientation en 3D des pores dans le repère global après chargement œdométrique

À titre d'exemple, si les pores sont orientés de manière aléatoire ce qui traduit un réseau poreux parfaitement isotrope, le dôme fera apparaître une distribution homogène des fréquences. Les graduations auront alors la même valeur moyenne de 0,31 % pour toutes les cases.

Les résultats présentés par la figure 10 montrent une orientation des pores suivant un angle d'environ 10° par rapport au plan horizontal (plan perpendiculaire à l'axe du chargement). Ces résultats confirment que pendant le chargement œdométrique, les pores se compriment et s'orientent progressivement vers le plan perpendiculaire à la contrainte axiale œdométrique.

V. CONCLUSIONS

Cet article présente une contribution dans le domaine de la micromécanique des argiles, visant à étudier les propriétés tridimensionnelles des micro-pores d'une argile kaolinitique saturée sous chargement œdométrique. Une nouvelle méthode, combinant l'observation tridimensionnelle par FIB-MEB et un traitement d'images basé sur l'apprentissage, a été développée. L'approche a permis de caractériser le réseau poreux et son évolution dans l'espace. Les pores sont quantifiés en termes de taille, de forme et d'orientation. Les résultats montrent qu'un chargement œdométrique provoque une compression des pores qui ont une forme lamellaire. Ces pores ont par ailleurs tendance à être plus allongés et orientés selon le plan normal à la contrainte axiale œdométrique. Enfin, les résultats FIB-MEB en termes de distribution de taille des pores ont été confrontés à ceux de la porosimétrie par intrusion de mercure. Ils montrent dans les deux cas un diamètre moyen diminuant avec l'augmentation de la contrainte verticale. Les deux techniques montrent cependant des différences liées à une différence d'échelle d'observation. La plage atteinte par la technique FIB-MEB est en effet plus restreinte et focalisée sur les petites échelles. Elle présente néanmoins l'avantage d'atteindre des pores non connectés, contrairement à la technique de porosimétrie au mercure. Comme perspective, le réseau poreux reconstruit en 3D

pourrait être utilisé pour identifier les propriétés de transport de l'argile, telles que la perméabilité.

REFERENCES

- Bai, X., Smart, R. (1997). Change in microstructure of kaolin in consolidation and undrained shear. *Géotechnique*, 47, 1009–1017. <https://doi.org/10.1680/geot.1997.47.5.1009>
- Biarez, J., Hicher, P.-Y. (1994). Elementary mechanics of soil behaviour: saturated remoulded soils. Balkema, Rotterdam.
- Collins, K., McGown, A. (1974). The form and function of microfabric features in a variety of natural soils. *Géotechnique*, 24, 223–254. <https://doi.org/10.1680/geot.1974.24.2.223>
- Cotecchia, F., Cafaro, F., Guglielmi, S. (2016). Microstructural Changes in Clays Generated by Compression Explored by Means of SEM and Image Processing. *Procedia Engineering*, 158, 57–62. <https://doi.org/10.1016/j.proeng.2016.08.405>
- Delage, P., Lefebvre, G. (1984). Study of the structure of a sensitive Champlain clay and of its evolution during consolidation. *Can. Geotech. J.*, 21, 21–35. <https://doi.org/10.1139/t84-003>
- Delage, P., Tessier, D., Marcel-Audiguier, M. (1982). Use of the Cryoscan apparatus for observation of freeze-fractured planes of a sensitive Quebec clay in scanning electron microscopy. *Can. Geotech. J.*, 19, 111–114. <https://doi.org/10.1139/t82-011>
- Ding, Y., Bennai, F., Jrad, M., Guyon, J., Hattab, M. (2023). Three-dimensional pore network of kaolin using FIB-SEM imaging. *Particulate Science and Technology*, 1–17. <https://doi.org/10.1080/02726351.2023.2292271>
- Gao, Q.-F., Hattab, M., Jrad, M., Fleureau, J.-M., Hicher, P.-Y. (2020a). Microstructural organization of remoulded clays in relation with dilatancy/contractancy phenomena. *Acta Geotech.*, 15, 223–243. <https://doi.org/10.1007/s11440-019-00876-w>
- Gao, Q.-F., Jrad, M., Hattab, M., Fleureau, J.-M., Ameer, L.I. (2020b). Pore Morphology, Porosity, and Pore Size Distribution in Kaolinitic Remolded Clays under Triaxial Loading. *Int. J. Geomech.*, 20, 04020057. [https://doi.org/10.1061/\(ASCE\)GM.1943-5622.0001682](https://doi.org/10.1061/(ASCE)GM.1943-5622.0001682)
- Hammad, T. (2010). Comportement des sédiments marins de grande profondeur : approche multiéchelle. *Thèse de doctorat*, Ecole centrale de Paris.
- Hammad, T., Fleureau, J.-M., Hattab, M. (2013). Kaolin/montmorillonite mixtures behaviour on oedometric path and microstructural variations. *European Journal of Environmental and Civil Engineering*, 17, 826–840. <https://doi.org/10.1080/19648189.2013.822428>
- Hattab, M., Fleureau, J.-M. (2011). Experimental analysis of kaolinite particle orientation during triaxial path. *Int. J. Numer. Anal. Meth. Geomech.*, 35, 947–968. <https://doi.org/10.1002/nag.936>

Hattab, M., Hammad, T., Fleureau, J.-M., Hicher, P.-Y. (2013). Behaviour of a sensitive marine sediment: microstructural investigation. *Géotechnique*, 63, 71–84. <https://doi.org/10.1680/geot.10.P.104>

Hicher, P.Y., Wahyudi, H., Tessier, D. (2000). Microstructural analysis of inherent and induced anisotropy in clay. *Mechanics of Cohesive-frictional Materials*, 5, 341–371. [https://doi.org/10.1002/1099-1484\(200007\)5:5<341::AID-CFM99>3.0.CO;2-C](https://doi.org/10.1002/1099-1484(200007)5:5<341::AID-CFM99>3.0.CO;2-C)

Hicher, P.Y., Wahyudi, H., Tessier, D. (1994). Microstructural analysis of strain localisation in clay. *Computers and Geotechnics*, 16, 205–222. [https://doi.org/10.1016/0266-352X\(94\)90002-7](https://doi.org/10.1016/0266-352X(94)90002-7)

Liu, C., Shi, B., Zhou, J., Tang, C. (2011). Quantification and characterization of microporosity by image processing, geometric measurement and statistical methods: Application on SEM images of clay materials. *Applied Clay Science*, 54, 97–106. <https://doi.org/10.1016/j.clay.2011.07.022>

NF EN ISO 11508, (2017). Qualité du sol –Détermination de la masse volumique des particules

NF EN ISO 17892-12, (2018). Reconnaissance et essais géotechniques - Essais de laboratoire sur les sols - Partie 12 : détermination des limites de liquidité et de plasticité

Qinghui, L., Jiajia, Y., Jian, Z., Zhigang, C. (2016). Microstructure Study on Intact Clay Behavior Subjected to Cyclic Principal Stress Rotation. *Procedia Engineering*, 143, 991–998. <https://doi.org/10.1016/j.proeng.2016.06.088>

Zhao, D., Gao, Q.-F., Hattab, M., Hicher, P.-Y., Yin, Z.-Y. (2020). Microstructural evolution of remolded clay related to creep. *Transportation Geotechnics*, 24, 100367. <https://doi.org/10.1016/j.trgeo.2020.100367>