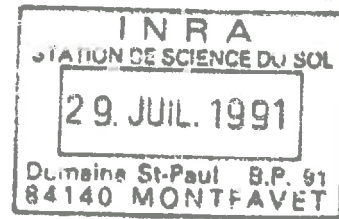


TH - FB 14

~~TH - L 39~~

# THÈSE



présentée au

CONSERVATOIRE NATIONAL DES ARTS ET METIERS

pour l'obtention du

DIPLOME D'INGENIEUR C.N.A.M.

## RECHERCHES EXPERIMENTALES SUR L'ORGANISATION DES PARTICULES DANS LES ARGILES

APPLICATION A L'ETUDE DE 4 PATES ARGILEUSES « CALCIQUES »  
EN VOIE DE DESSICCATION

par

**Daniel TESSIER**

Laboratoire de Géologie appliquée  
le 25 Juin 1975

## — VANT PROPOS

En 1967, à mon arrivée au Laboratoire des Sols, M. PEDRO me proposa un poste de technicien de laboratoire dans l'équipe de Pédologie. Dans le cadre de mes activités, je me suis d'abord initié aux techniques de la minéralogie des argiles, puis, avec le temps, M. PEDRO m'a fait participer de plus en plus activement aux travaux de recherche du Laboratoire.

Parallèlement à ceci, j'ai suivi un certain nombre de cours au Conservatoire National des Arts et Métiers qui, après six années, m'ont permis de débiter les travaux de recherche personnels qui font l'objet du présent mémoire.

Je dois à M. FILLIAT, professeur au Conservatoire des Arts et Métiers, mon intérêt pour les problèmes liés à la géologie appliquée et au comportement des matériaux. Je le remercie de m'avoir autorisé à préparer ce mémoire et de présider le jury de thèse.

Pour l'ensemble de ma vie professionnelle, je tiens à remercier particulièrement M. PEDRO, Directeur de Recherches à l'I.N.R.A. C'est lui qui a assuré la majeure partie de ma formation. J'ai beaucoup appris aussi bien sur le plan des connaissances que sur celui des méthodes : qu'il trouve ici toute ma reconnaissance pour la confiance qu'il m'a accordée.

C'est en travaillant avec les membres de l'équipe dirigée par M. MONNIER, Directeur de Recherches à l'I.N.R.A., que je me suis intéressé aux problèmes de physique du sol. Malgré son départ en Avignon, M. MONNIER a bien voulu proposer l'approche originale de ce travail et ensuite participer activement à cette action concertée qui s'est établie entre les équipes de Versailles et Avignon. Je le remercie pour la confiance qu'il a marquée à mon égard.

Je me fais <sup>aussi</sup> un devoir d'exprimer ma gratitude à M. HENIN, membre de l'Académie d'Agriculture, chargé de mission auprès de la Direction Générale de l'I.N.R.A. et à M. CHAUSSIDON, Chef du Département de Science du Sol qui, après avoir permis mes recherches, ont bien voulu me faire part de leurs critiques et de leurs suggestions.

Le travail expérimental qui fait l'objet du présent mémoire ayant été entièrement réalisé dans le cadre de la Station de Science du Sol de l'Institut National de la Recherche Agronomique, <sup>à Versailles</sup> j'adresse mes remerciements à M. R. BETREMIEUX qui fut toujours un interlocuteur attentif et accueillant ; à M. M. ROBERT, pour ces conseils judicieux et sa disponibilité de tous les instants ; à M. DELMAS pour ses critiques précises et opportunes ; à M. A. CHAUVEL pour sa collaboration ; à Mlles J. BERRIER et A. VICENTE et à MM. J. MAMY, G. VENEAU, M.H. RAZZAGHE, F.K. SEDDOH, sans oublier mes collègues d'Avignon A. FAURE et J.C. FIES pour les services de tous ordres qu'ils m'ont rendus.

Ces remerciements vont aussi à Mme DIMEY, à Mme PELLISSIER et à Mme GUNY pour leur serviabilité et pour le travail de dactylographie.

Je n'oublie pas non plus l'aide que m'ont apportée M. DESPREZ et Mlle CHEVRIER qui, malgré leurs lourdes charges d'enseignements au C.N.A.M., ont toujours trouvé le temps de prendre en considération les problèmes que nous leur soumettions.

Je voudrais enfin, réserver une mention spéciale à ma compagne JANINE qui m'a toujours soutenu dans cette phase terminale de mon travail, mais aussi pendant toutes ces années de cours, malgré les longues heures de solitude.

\* \* \*

## SOMMAIRE

### INTRODUCTION

#### PREMIERE PARTIE : PRESENTATION DES MATERIAUX ET DES METHODES

- A - Caractéristiques générales des matériaux
- B - Préparation des argiles en vue des études sur le phénomène de retrait
- C - Caractérisation hydrique des pâtes argileuses et définition du protocole expérimental
- D - Méthodes d'étude des matériaux

#### DEUXIEME PARTIE : ETUDE DU COMPORTEMENT SPECIFIQUE DES QUATRE MATERIAUX ARGILEUX

- A - Kaolinite
- B - Montmorillonite
- C - Illite
- D - Argile H.B.

#### TROISIEME PARTIE : ORGANISATION ET COMPORTEMENT DES MATERIAUX ARGILEUX EN COURS DE DESSICCATION (Phénomène de retrait)

- A - Type d'organisation et son évolution en relation avec le comportement expérimental des 4 argiles calciques étudiées
- B - Regards et perspectives générales sur l'organisation et le comportement des différentes argiles en fonctions des conditions du milieu pédologique

Conclusions Générales

Bibliographie



\*\*\*

Considéré d'un point de vue physique, le sol est constitué par un ensemble de particules de taille variable et dont la distribution dimensionnelle va des graviers (0,5-2 mm), aux sables (50-500  $\mu$ ), aux limons (2-50  $\mu$ ) et enfin aux argiles (< 2  $\mu$ ). L'association de ces particules en diverses proportions confère au sol un certain nombre de propriétés physiques, qui se manifestent sur le terrain à l'examen du profil pédologique ou cultural, par le développement d'un certain état structural.

Pour caractériser cet état, à côté de l'observation morphologique détaillée, un certain nombre de tests, comme les tests de stabilité de S. HENIN, ont été mis au point qui rendent assez bien compte du comportement du sol et en particulier de la stabilité de la structure. Mais, nous avons aussi à notre disposition des méthodes d'études globales, qui permettent de définir certains paramètres physiques propres au sol ; ce sont notamment la teneur en eau, la densité apparente et la porosité. Ces paramètres nous apportent indéniablement des informations intéressantes en ce qui concerne les caractéristiques du système poreux. Toutefois, ceux-ci étant établis sur des matériaux granulométriquement complexes, ne permettent pas d'aborder l'étude dans le détail du mode d'arrangement des particules constitutives et en particulier des particules argileuses. C'est donc sur ces dernières que nous avons décidé de porter notre effort.

Il faut signaler que des travaux expérimentaux ont déjà été effectués dans ce domaine à partir d'argiles pures, mais ils ne concernaient que l'étude de suspensions : ceux-ci ont ainsi montré que, dans des conditions physicochimiques variées, les possibilités d'association entre les particules constitutives étaient multiples. Mais, ce genre de travaux sur des suspensions, outre qu'ils sont techniquement difficiles à réaliser, ne sont pas directement transposables aux teneurs en eau des sols, qui sont toujours beaucoup plus faibles.

.../...

D'un autre côté, des études expérimentales ont été entreprises sur la question des propriétés de surface ou sur le mécanisme de l'hydratation des argiles. Là encore les résultats obtenus qui ne concernent pas les problèmes d'organisation des particules sont fort intéressants, mais ils portent sur des échantillons argileux dont les teneurs en eau beaucoup plus faibles que celles des sols.

Enfin, il reste à ajouter que les études minéralogiques classiques, qui se limitent à déterminer des types structuraux, ne prennent pas non plus en compte, ni le problème de l'hydratation aux teneurs en eau qui nous intéressent, ni surtout l'organisation des argiles.

Aussi, c'est pour cet ensemble de raisons que nous avons été conduits à aborder l'étude directe de ces différents problèmes et ce, à des teneurs en eau correspondant à celles rencontrées habituellement dans les sols.

Les objectifs principaux que nous nous sommes fixés à l'origine peuvent se résumer de la manière suivante :

- améliorer nos connaissances sur la nature morphologique des particules argileuses et notamment chercher à identifier les entités texturales qui jouent un rôle moteur dans l'organisation ,
- décrire l'arrangement de ces particules dans toute la gamme des teneurs en eau qui sont celles des sols ,
- enfin, tenter d'en déduire un certain nombre de conséquences sur le comportement des sols et matériaux argileux.

Au départ, un travail conçu de cette manière présentait deux difficultés particulières : la première consistait à s'affranchir de la complexité du système poreux sol, la seconde résultait de la nécessité de mettre au point préalablement des méthodes adaptées à l'étude de l'organisation de particules dont la taille est voisine du micron et qui se trouvent au sein de matériaux relativement riches en eau.

- Pour s'affranchir de la complexité du système poreux sol, et pour éviter les effets d'interaction avec des particules plus grossières, nous avons retenus des modèles simples constitués par des argiles pures. Ces argiles étant extraites d'échantillons naturels, nous avons en même temps supprimé l'organisation préexistante consécutive à l'histoire hydrique du matériau. Puis, après avoir rendu les échantillons homogènes, ceux-ci sont amenés par paliers successifs à des teneurs en eau de plus en plus faibles; chaque palier correspond à un état de contrainte déterminé qui est comparable d'une argile à l'autre. Le but consistait donc à suivre la réagrégation spontanée des particules sous l'effet de la dessiccation.

- Mais une telle conception "historique" des essais impliquait d'un autre côté le contrôle de l'organisation des matériaux pour chaque état de contrainte et à l'équilibre. C'est à cet effet que des méthodes appliquées, directes ou indirectes, ont été utilisées, en particulier contrôle du volume externe, étude de l'orientation des particules à toutes les teneurs en eau et enfin observation directe grâce au microscope électronique à balayage.

C'est à la synthèse des résultats obtenus en s'appuyant sur les conceptions et méthodes qui viennent d'être esquissées, que ce mémoire est consacré.

\*  
\* \*

P R E M I E R E   P A R T I E

\* \* \*

P R E S E N T A T I O N   D E S   M A T E R I A U X   E T   D E S   M E T H O D E S

## A - CARACTERISTIQUES GENERALES DES MATERIAUX -

### I - STRUCTURE ET MODE D'ASSOCIATION DES FEUILLETS D'ARGILE

Les argiles étant par définition des matériaux fins ( $\phi < 2 \mu$ ), chaque échantillon d'argile est constitué par un grand nombre de particules. Dans un échantillon homogène, toutes les particules sont minéralogiquement identiques, en sorte que la connaissance du matériau repose sur la connaissance d'une particule.

Or, on sait que les minéraux argileux font partie de la famille des phyllosilicates, c'est à dire des silicates présentant une structure bidimensionnelle. Dans ces conditions, chaque particule est constituée par la superposition d'un certain nombre de feuillets élémentaires de nature et d'épaisseur bien déterminée. Ainsi, s'avère-t-il indispensable de procéder en 2 étapes :

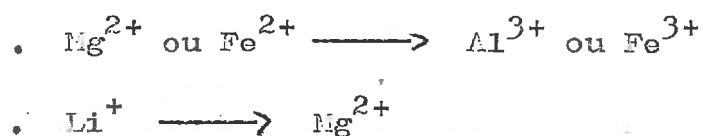
- 1) préciser les principaux types de feuillets élémentaires.
- 2) indiquer le mode de superposition et d'association des feuillets au sein d'une particule argileuse.

#### 1° Structure du feuillet élémentaire

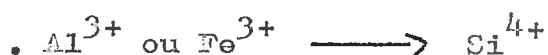
Il existe essentiellement deux types de feuillets simples :

- les feuillets 1/1 ou à 7 Å, dont le représentant principal est le feuillet de kaolinite ; il est constitué par l'empilement d'une couche tétraédrique sur une couche octaédrique. Le feuillet est alors neutre.

- les feuillets 2/1 ou à 10 Å, qui présentent 2 couches tétraédriques encadrant une couche octaédrique et dont les feuillets sont généralement chargés. Les charges négatives sont créées par suite de l'existence, au sein du feuillet, de substitutions isomorphiques, non équivalentes du point de vue électrique. Ces substitutions peuvent être de deux sortes suivant qu'elles sont localisées en couche octaédrique :



ou en couche tétraédrique



Chaque substitution peut en effet être considérée comme le point de localisation d'une charge négative monovalente. L'ensemble des charges est neutralisé par l'intermédiaire de cations compensateurs disposés entre les feuillets.

La valeur de la charge exprimée par demi-maille cristalline ainsi que sa localisation confèrent au minéral un certain nombre de propriétés ; elles jouent notamment sur la cohésion des feuillets entre eux et, par voie de conséquence, sur les propriétés d'hydratation.

La classification des phyllosilicates 2/1 est basée principalement sur le déficit de charge propre à chaque feuillet en général sur la formule structurale (cf Tableau 1) ; nous nous sommes référés plus particulièrement les travaux de R.C. MACKENZIE (1955), G.V. BRINDLEY (1966) et G. PEDRO (1967).

## 2° Mode d'association des feuillets élémentaires entre eux

Nous avons défini un feuillet d'argile élémentaire, dont l'épaisseur est soit de 7, soit de 10 Å. Mais dans la nature, ces feuillets ne sont jamais indépendants ; ils se superposent les uns aux autres au cours de la cristallogenèse pour constituer des particules d'une certaine épaisseur et d'une certaine taille, qu'on appelle des particules primaires.

Le mode de superposition de feuillet à feuillet, qui dépend de la structure du minéral considéré joue un rôle important sur les propriétés d'hydratation :

- Tout d'abord dans la kaolinite, le feuillet est neutre, donc les espaces interfoliaires sont vides et non réactifs. Dans ces conditions, l'empilement des feuillets au sein d'une particule

.../...

Tableau I - CLASSIFICATION DES PHYLLOSILICATES 2/1  
 dans lesquels la compensation est réalisée par  
 l'intermédiaire de cations

ge par maille	Série dioctaédrique ( $Al^{3+}$ ou $Fe^{3+}$ )	Série trioctaédrique ( $Mg^{2+}$ ou $Fe^{2+}$ )
0	Pyrophyllite * $Si_4 O_{10} Al_2 (OH)_2$	Talc (Mg) * $Si_4 O_{10} Mg_3 (OH)_2$
0,2 à 0,6 Smectites	Montmorillonite $Si_4 O_{10} (Al_{2-y} Mg_y) (OH)_2, M^I_y$  Beidellite $Si_{4-x} Al_x O_{10} Al_2 (OH)_2, M^I_x$	Hectorite $Si_4 O_{10} (Mg_{3-y} Li_y) (OH)_2, M^I_y$  $Si_{4-x} Al_x O_{10} Mg_3 (OH)_2, M^I_x$
0,6 à 0,9	Illites $Si_{4-x} Al_x O_{10} Al_{2-y} Fe^{2+}_y (OH)_2,$ $Kx + y$	Vermiculites $Si_{4-x} Al_x O_{10} Mg_{3-y} Fe^{3+}_y (OH)_2,$ $M^I_{x-y}$
1 Micas	Muscovite * $Si_3 Al O_{10} Al_2 (OH)_2, K^+$	Biotite * $Si_3 Al O_{10} (Mg-Fe^{2+})_3 (OH)_2, K^+$
2 Micas durs	Margarite * $Si_2 Al_2 O_{10} Al_2 (OH)_2, Ca^{2+}$	Clintonite * $Si_2 Al_2 O_{10} Mg_3 (OH)_2, Ca^{2+}$

\* phyllosilicates n'ayant pas le comportement des minéraux argileux



primaire s'effectue jusqu'au contact des anions oxygène et dans un ordre parfait (cf. figure 1). Ainsi, la seule surface accessible à l'eau reste la surface externe de la particule ; ses composantes étant les surfaces latérale et basale.

- Dans le cas des minéraux 2/1 qui possèdent un déficit de charge, des cations viennent s'insérer dans les espèces interfoliaires. Plusieurs éventualités peuvent alors se présenter :

- Pour les illites (argiles micacées), le feuillet est fortement chargé ; d'un autre côté, le cation interfoliaire, qui est le potassium, est peu hydratable. Dans ces conditions, la superposition des feuillets se fait pratiquement jusqu'au contact, et ce quelque soit la quantité d'eau présente au sein de l'échantillon (figure 2). L'hydratation n'affecte donc que les surfaces externes ; notons toutefois que dans l'illite, les surfaces basales sont des surfaces chargées.

Pour les vermiculites et les smectites, le cation interfoliaire est ou peut être hydraté suivant l'humidité du milieu ambiant. Dans ce cas, l'hydratation intéresse non seulement la surface externe, mais aussi la surface interne (entre les feuillets). Ainsi, comme de l'eau peut pénétrer entre les feuillets, l'équidistance apparente prend une valeur supérieure à  $10 \text{ \AA}$  (figure 3). Le minéral est dit alors expansible.

En définitive, nous voyons apparaître trois grands groupes de minéraux argileux suivant la position des déficits de charges susceptibles d'être compensés par des cations hydratés (cf. tableau II).

Ces différentes considérations, propres à la structure des argiles, vont nous aider à préciser notre choix quant à la nature des matériaux à utiliser dans ce travail. Toutefois, ces seuls critères structuraux sont insuffisants pour aborder une étude représentative du retrait des argiles ; en effet, si l'on veut appréhender de manière convenable le comportement des sols argileux, nos matériaux devront aussi constituer un modèle dont la validité est aussi satisfaisante que possible du point de vue statistique.

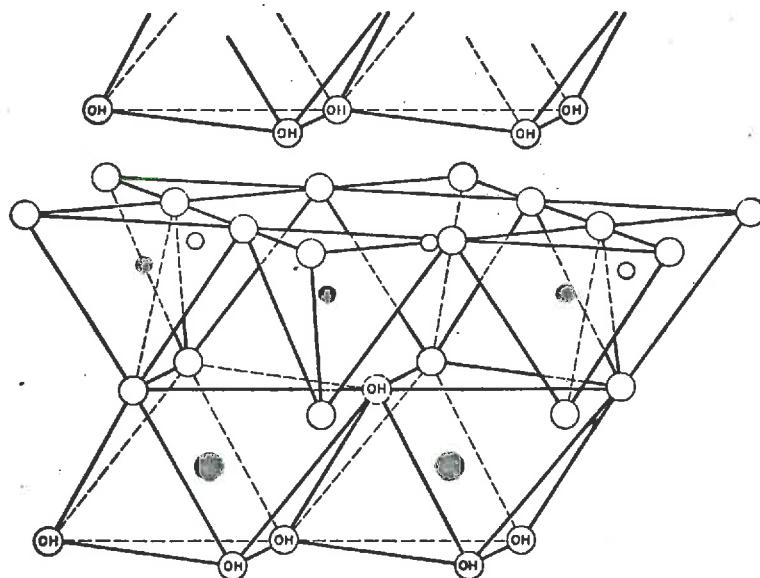


Fig. 1 - Mode de superposition de 2 feuillets de kaolinite au contact (d'après GRIM)

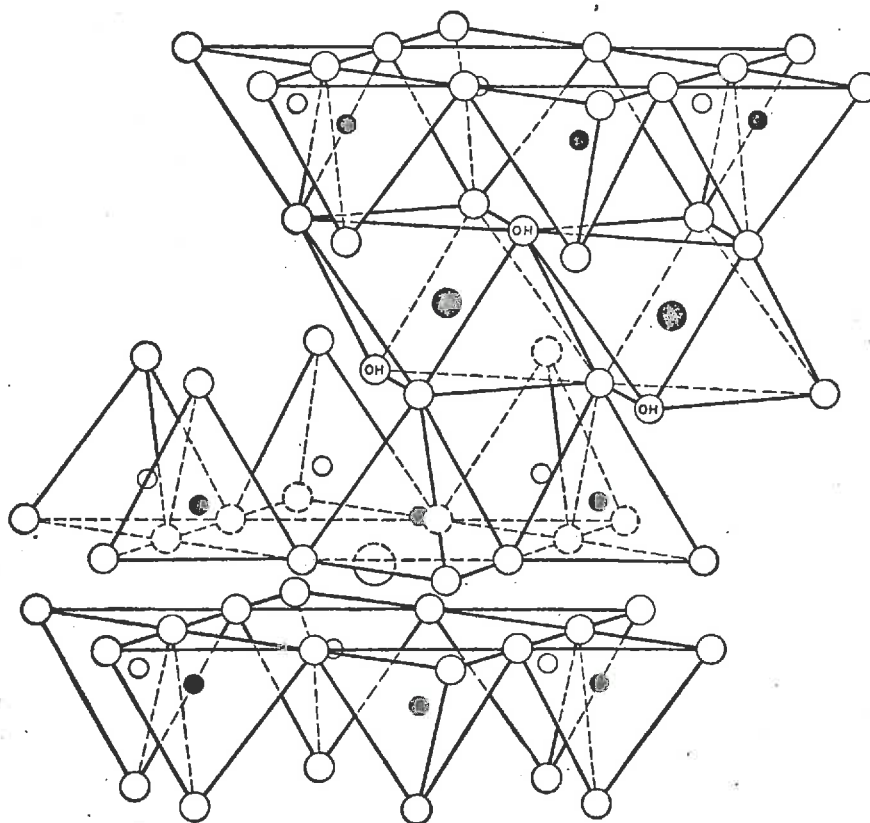
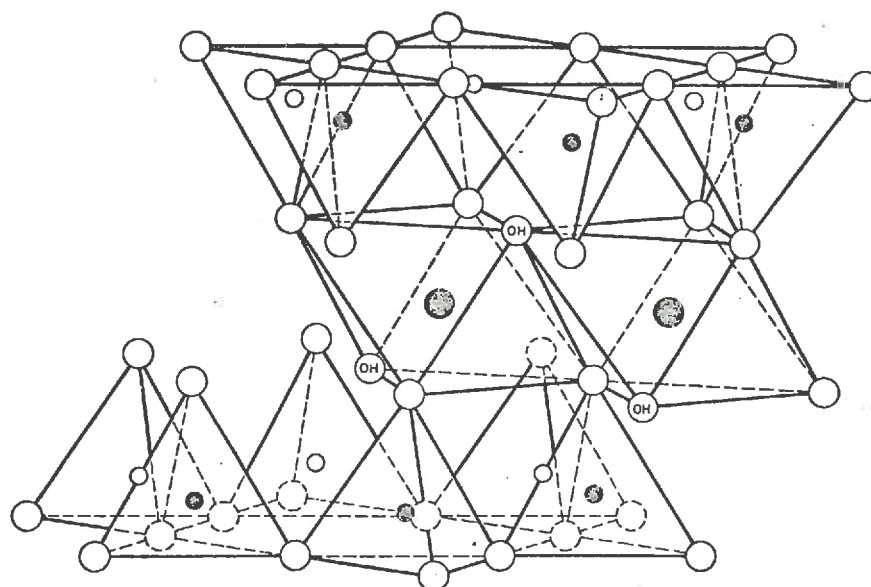


Fig. 2 - Mode de superposition au contact de 2 feuillets illitiques ou micacés (d'après GRIM)



Cations échangeables hydratés

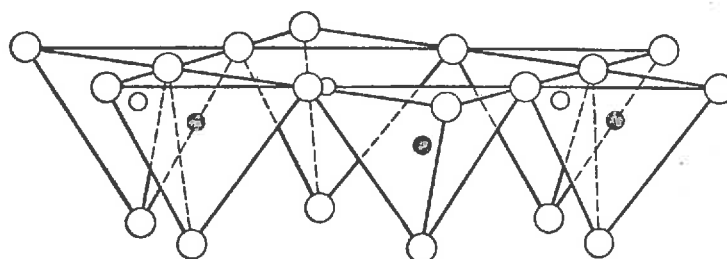


Fig. 3 - Mode de superposition de 2 feuillets de smectites  
(d'après GRIM)

Tableau II - Position des charges disponibles pour les cations hydratés dans les trois minéraux argileux types

Minéral	Charges de bordure (ruptures de liaison en bordure des feuillets)	Charges basales externes	Charges basales internes accessibles à cations hydratés
Kaolinite	+	-	-
Illite	+	+	-
Montmorillonite	+	+	+

Ceci étant, nous ne devons pas oublier de noter toutefois que les argiles des sols peuvent présenter des particularités et qu'elles sont souvent différentes des argiles de gisement.

## II - CHOIX DES MATERIAUX ETUDIÉS

### 1° Principales argiles rencontrées dans les sols

Les études minéralogiques que nous avons été amenées à réaliser dans le cadre de l'établissement de la carte pédologique de France montrent qu'il existe trois grands groupes d'argiles, aussi bien dans les sols de ce pays que dans toutes les autres régions sous climat tempéré :

- . les argiles kaoliniques
- . les argiles micacées
- . les smectites (vraies)

Ces minéraux peuvent être présents en plus ou moins grande quantité dans les divers types de sols. Mais ils peuvent exister en forte quantité, soit lorsqu'ils proviennent de sols développés sur des formations typiquement argileuses : Smectites du Thanétien et du Sparmacien lagunaire au nord et à l'est de Paris, Kaolinites du Sparmacien détritique : POMEROL (1967), smectites du Cénomanién moyen du Bassin de Paris, ISAMBERT, GOBILLOT et BOURLET (à paraître), soit encore lorsqu'ils proviennent de la dissolution sélective des carbonates : certaines argiles à silex et argiles à meulière kaoliniques.

Toutefois, dans la plupart des sols, les argiles provenant de l'altération des roches carbonatées et les argiles de sol développés sur limon des plateaux sont composées de plusieurs minéraux argileux. Ainsi les argiles d'altération du Jurassique sont plus ou moins riches en vermiculite, illite, kaolinite et sont dépourvues de smectites, tandis que celles développées sur crétacé sont souvent riches en smectites : MATHIEU et DE CONINCK (1972). Enfin, les sols développés sur matériaux limoneux du nord du bassin de Paris possèdent un horizon Bt riche en argile constitué par un mélange d'argiles micacées (illites), de smectites et de kaolinite auquel s'ajoute une certaine quantité d'oxydes de fer pouvant aller jusqu'à 10 %.

## 2° Caractéristiques générales de ces diverses argiles

Comme nous le savons, les argiles des sols sont souvent impures : elles sont associées à différents minéraux, dont le quartz, les feldspaths, la calcite. Toutefois, l'essentiel des argiles est contenu la plupart du temps dans la fraction  $< 2 \mu$ . L'examen de cette fraction montre d'ailleurs que les agrégats dissociés possèdent une dimension inférieure au micron, même pour les kaolinites. Dans le cas de ce minéral, ce fait est d'ailleurs confirmé grâce aux évaluations de la surface spécifique (voisine de  $20 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ ). Notons que cette finesse des particules va généralement de pair avec un certain désordre dans l'empilement des feuillets, mis en évidence aux rayons X : les kaolinites des sols sont plutôt des argiles désordonnées du type fire-clay que des kaolinites sensu stricto.

Dans ces conditions, si nous voulons étudier le comportement à la dessiccation des argiles kaoliniques contenues dans les sols argileux des régions tempérées, notre choix devra se porter plutôt sur une kaolinite du type fire-clay, qui présente des particules de petite dimension, que sur une kaolinite bien ordonnée. Ainsi, la plupart des argiles kaoliniques de gisement utilisées par les céramistes ne conviennent pas, du fait qu'elles sont très bien cristallisées et que la dimension de leurs particules est trop importante.

## 3° Argiles utilisées dans ce travail

Compte tenu des propriétés théoriques que nous avons formulées auparavant et des différentes remarques que nous venons d'évoquer, nous avons retenu 3 sortes d'argiles :

- . une kaolinite du bassin de Provins
- . une illite du Puy en Velay
- . une montmorillonite de gisement

Ces trois argiles monominérales vont nous permettre d'analyser le comportement spécifique de chacun des minéraux purs, qui ultérieurement servira de base de référence lors de l'étude du comportement des sols lourds, généralement développés sur ces argiles.

.../...

En outre, pour cerner de plus près le comportement d'un mélange d'argiles, nous avons ajouté une argile extraite des sols limoneux du Bassin de Paris et en particulier de l'Horizon Bt d'un sol lessivé sur limon des plateaux développé à Versailles - La Minière ; nous l'appellerons argile H B (Horizon B).

Les argiles kaoliniques du Bassin de Provins ont été bien décrites par FLEURENCE ~~ET~~ NICOLAS (1966). Pour l'illite du Puy en Velay une étude de base a été réalisée par GABIS (1958). Un travail complet a d'ailleurs été effectué sur une argile de ce même gisement par différents laboratoires dans le cadre d'une opération conjointe placée sous l'égide de l'O.C.D.E. Quant à l'argile gonflante, nous avons utilisé une bentonite vendue par la Société SOBPEP

### III - CARACTERES GENERAUX DES MINERAUX ETUDIES

#### 1° Etude par diffraction des rayons X et à l'aide des méthodes thermiques

Les courbes d'analyse thermique différentielle et d'analyse thermopondérale relatives aux quatre argiles retenues ont été regroupées dans les figures 4 et 5.

##### a) Kaolinite de Provins

Le matériau argileux que nous avons utilisé est en tout point identique à celui étudié par FLEURENCE ~~et~~ NICOLAS (1966). Il est très pur et ne contient qu'une très faible quantité de quartz.

Sur le plan de la kaolinite à proprement parler, le désordre apparaît surtout au niveau des deux rares  $(1\bar{1}0)$  et  $(1\bar{1}1)$ , qui se trouvent confondues à l'intérieur d'une bande diffuse allant de  $4,45 \text{ A}^\circ$   $(020)$  à  $4,18 \text{ A}^\circ$   $(1\bar{1}1)$ . Cette bande est la preuve d'une absence partielle d'interférences entre les rayons diffractés par les différents feuillets superposés, donc d'une tendance vers un réseau de type bidimensionnel (figure 6).

.../...



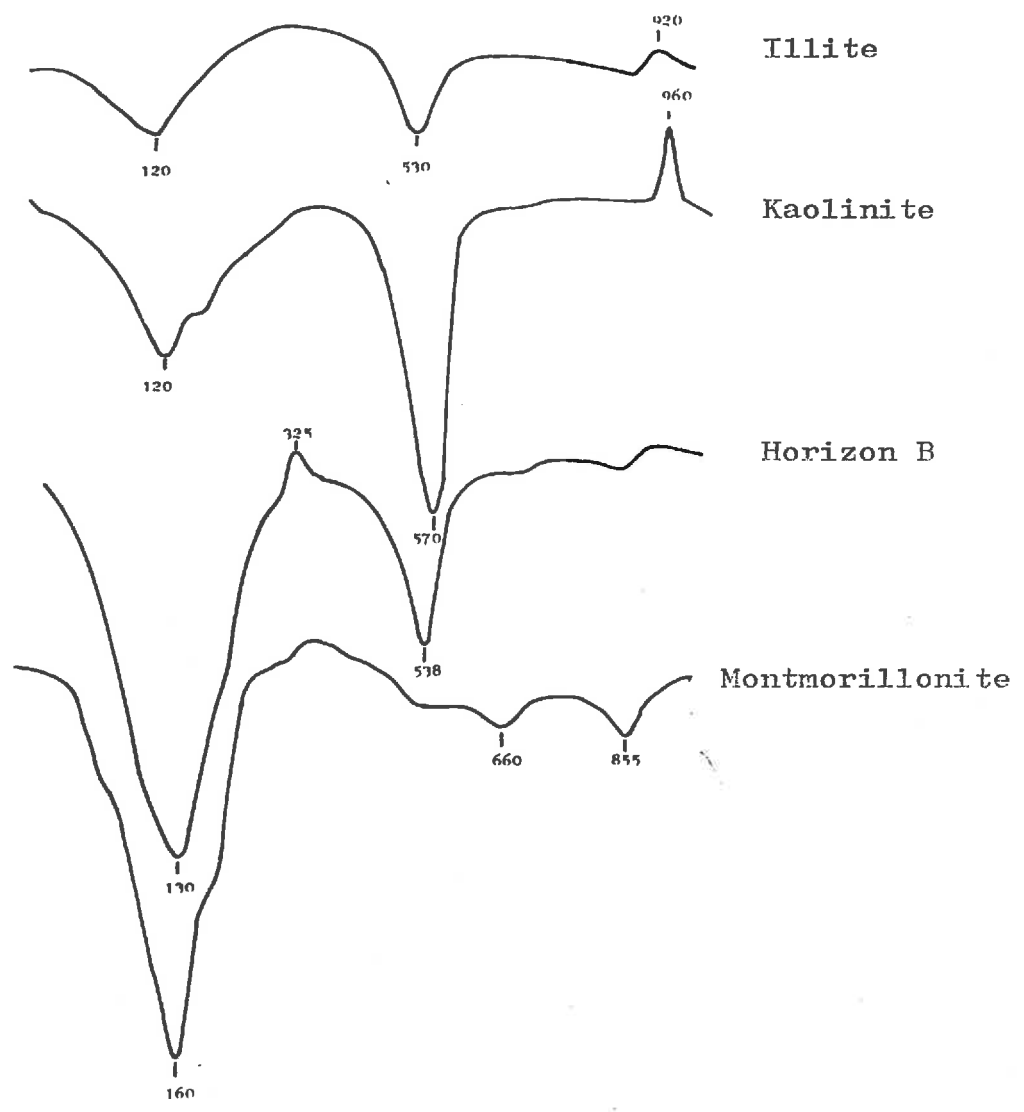


Fig. 4 - Courbes d'analyse thermique différentielle relatives aux 4 argiles.

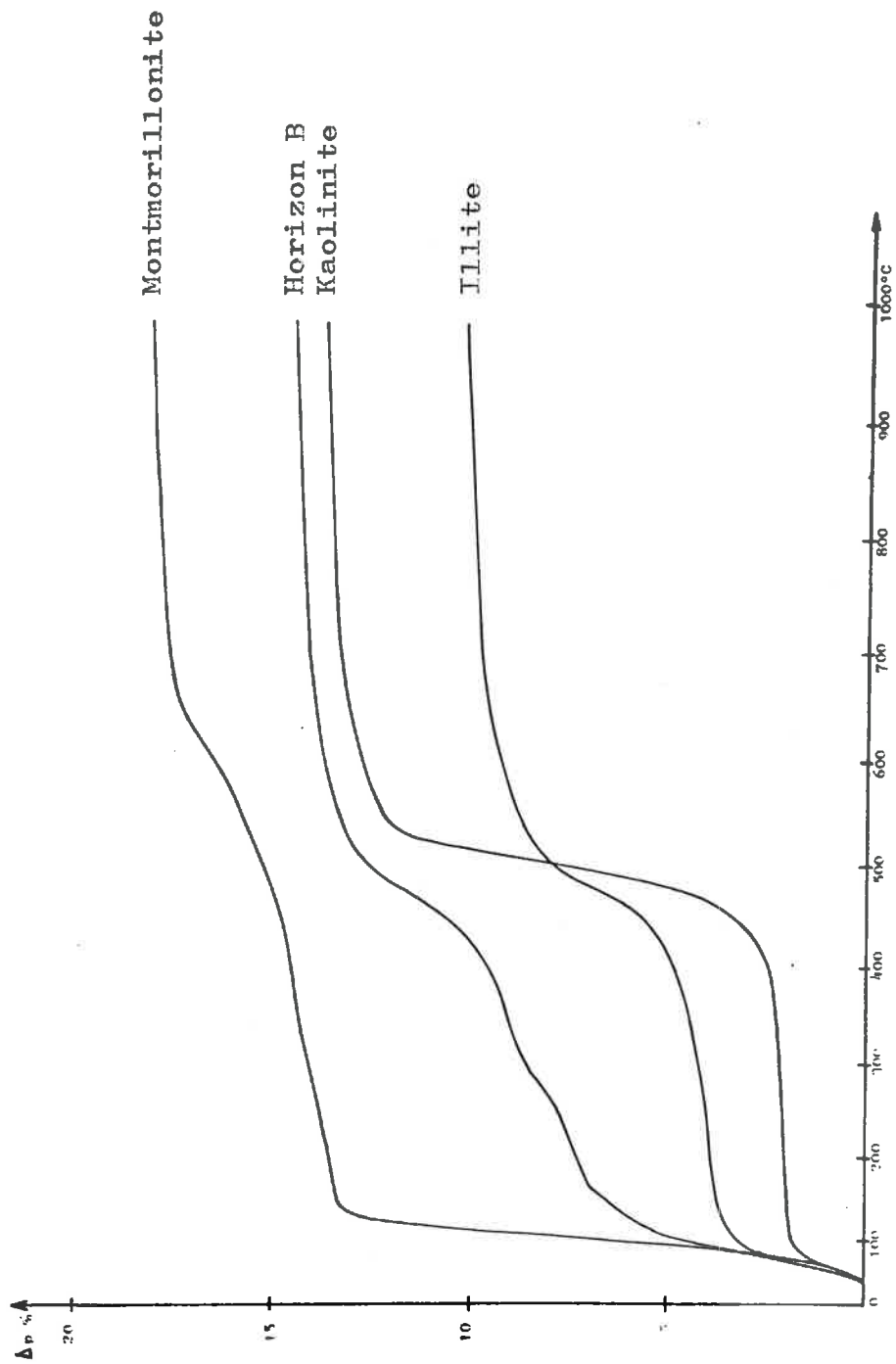


Fig. 5 - Courbes d'analyse thermodéterminale relatives aux 4 argiles.

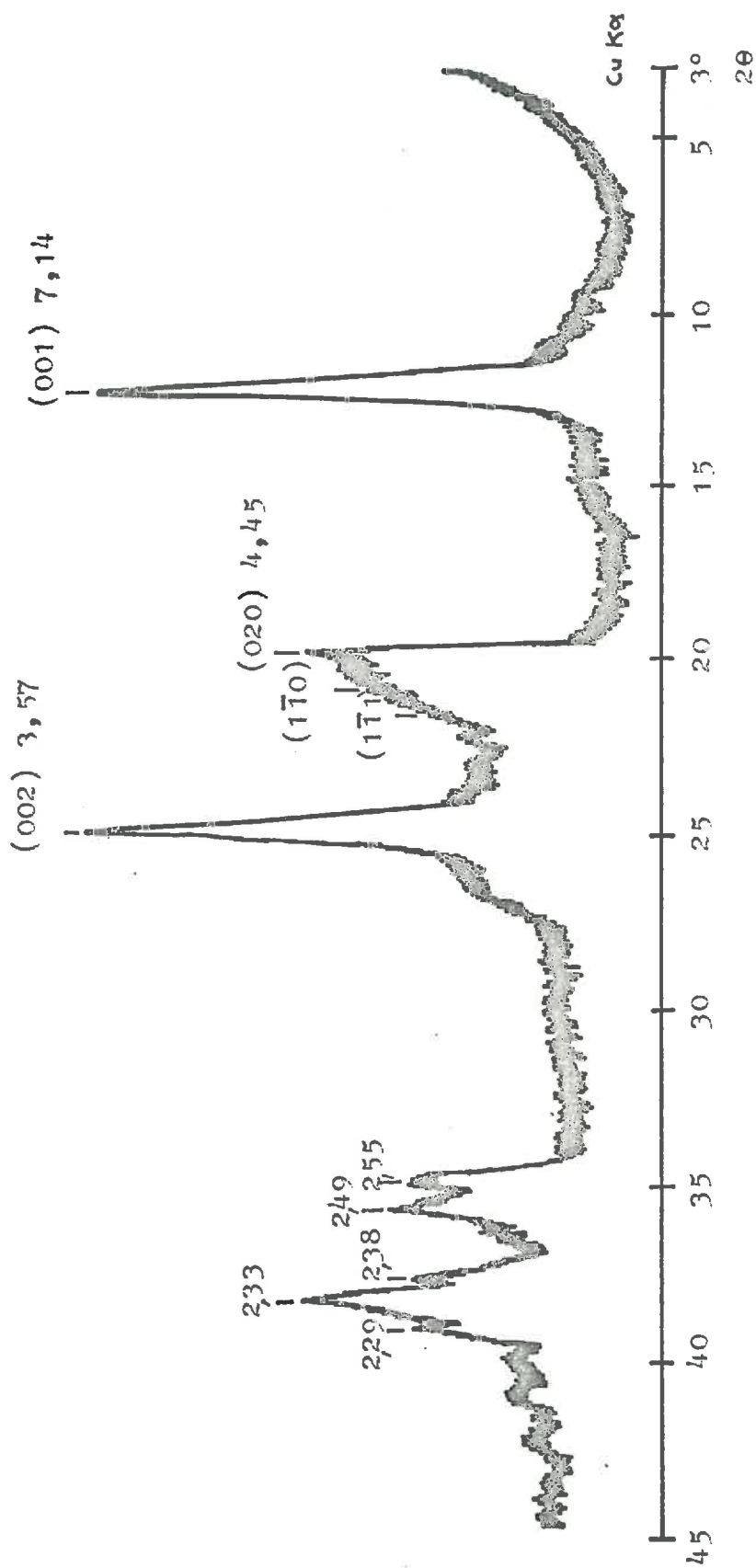


Fig. 6 - Diagramme de poudre réalisé sur la kaolinite de Provins et montrant le désordre dans l'empilement des feuillets

Le départ d'eau avant 200°C représente 1,5 %, ce qui est relativement élevé pour une kaolinite ; il va très probablement de pair avec l'existence d'un minéral désordonné.

b) Illite

L'étude précise d'un minéral de ce gisement réalisée par les différents laboratoires mis en oeuvre par l'O.C.D.E., révèle qu'il s'agit d'une illite très pure du type 2 M<sub>1</sub>.

Notons que le matériau < 2 μ contient aussi une très petite quantité de kaolinite ; mais celle-ci n'a pu être mise en évidence que sur des diagrammes très bien orientés et notamment sur des spectres photos réalisés par transmission (cf photo 1).

c) Montmorillonite

Les spectres de diffraction X montrent qu'il s'agit d'une smectite pratiquement pure, contenant très peu de quartz et caractérisée par une absence totale de minéraux micacés et de kaolinite (cf figure 7).

Le départ d'eau correspondant aux hydroxyles de constitution se situe après 600°C, ce qui correspond effectivement à une montmorillonite au sens strict.

d) Horizon B

La diffraction de rayons X fait apparaître que le mélange est constitué :

- d'une kaolinite très désordonnée,
- d'une argile micacée (illite),
- et de phyllites expansibles dont plus de la moitié gonfle en présence de glycérol (figure 8).

Le test K-éthylène glycol préconisé par ROBERT (1972) pour différencier les smectites de transformation (venant des illites) des smectites vraies, ne provoque pas une expansion du minéral. Aussi, peut-on dire qu'il s'agit en réalité d'une smectite de transformation associée à une vermiculite.

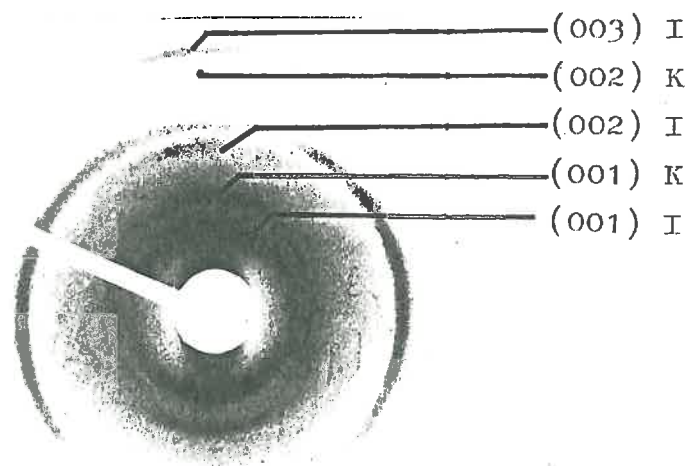


Photo 1 - Spectre de rayons X indiquant la présence au sein de l'illite, d'une faible quantité de kaolinite.

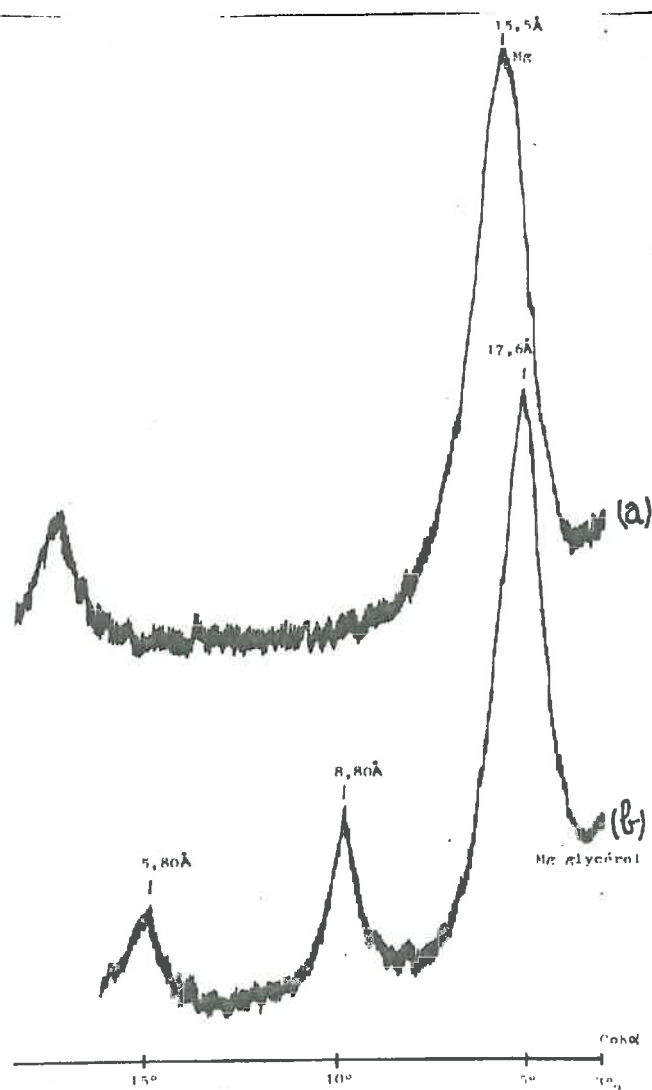


Fig. 7 - Spectres de rayons X réalisés sur la montmorillonite  
(a) Mg normal. - (b) Mg glycérol

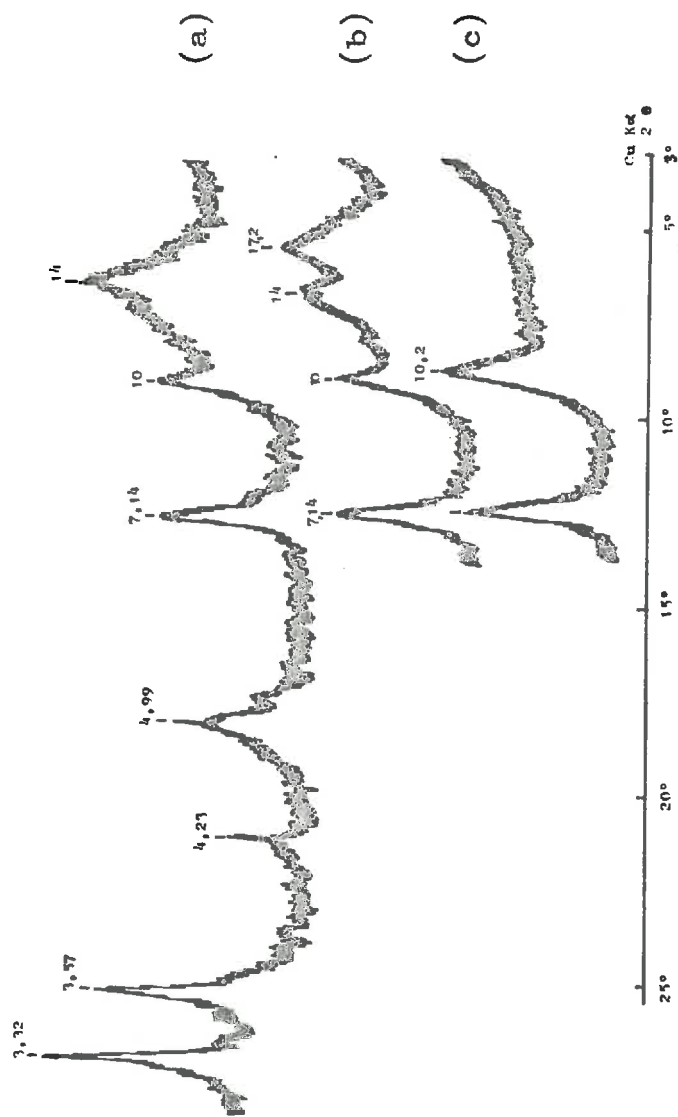


Fig. 8 - Spectres de rayons X réalisés sur l'argile H.B. :

(a) Spectre Mg - Normal

(b) Spectre Mg - Glycérrol

(c) Spectre réalisé sur l'argile K chauffée à 110°C et soumise ensuite à de l'éthylène glycol vapeur

Les résultats obtenus à l'aide des autres méthodes : analyses thermiques, évaluation de la capacité d'échange en cations et mesure des surfaces, ont permis de préciser la composition du mélange, qui se présente de la façon suivante :

- 60 à 65 % de phyllites 2/1, dont
  - . 35-40 % de minéraux gonflants (smectite 2/3, vermiculite 1/3)
  - . 25 % d'illite
- 25 % de kaolinite
- 10 % d'oxydes et d'hydroxydes de fer
- une petite quantité de quartz difficile à préciser.

2° Etude de la constitution chimique : établissement de la formule structurale et évolution de la capacité d'échange en cations (\*)

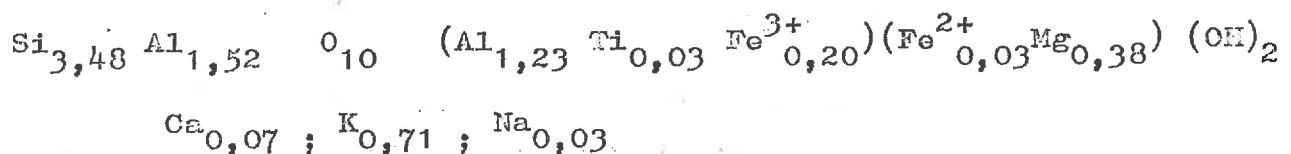
a) Kaolinite

L'analyse chimique fait apparaître que la teneur totale en fer de l'échantillon est de 1,6 %. Mais l'utilisation de la méthode DE ENDREDY (\*\*\*) permet en pratique d'extraire tout le fer contenu dans le matériau. De ce fait, le fer présent est très labile, en sorte qu'il est logique de considérer qu'il n'entre pas dans la constitution de la kaolinite. La formule structurale est donc la formule classique  $\text{Si}_2\text{O}_5 \text{Al}_2 (\text{OH})_4$ .

La capacité d'échange est relativement élevée ; 30 m.e. pour 100 g de minéral déshydraté.

b) Illite

La formule structurale qui a été établie à partir de l'échantillon sous sa forme calcique s'écrit :



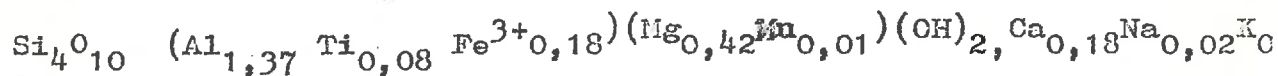
La capacité d'échange en cations est de 30 milliéquivalents pour 100 g de minéral déshydraté.

(\*) Les analyses chimiques ont été effectuées par G. VENEAU  
 (\*\*\*) méthode d'extraction sélective du fer considéré, comme ne faisant pas partie du réseau cristallin des argiles. Utilise un mélange acide oxalique-oxalate d'ammonium à pH 3,5



c) Montmorillonite

La formule structurale de l'échantillon rendu calcique est la suivante :



Le déficit de charge interne au feuillet est ainsi évalué à 0,4 charge négative par demi-maille cristalline. Comme celui-ci est entièrement d'origine octaédrique, cela confirme l'existence d'une montmorillonite vraie.

La capacité d'échange est de 82 m.e. pour 100 g d'argile déshydratée à 300°C.

d) Horizon B

Du fait que ce matériau est un mélange d'argiles de différentes natures minéralogiques, nous n'avons pu établir la formule structurale propre aux argiles 2/1. Toutefois, l'extraction des oxydes de fer par la méthode DE ENDREDDY révèle que ceux-ci représentent une quantité de l'ordre de 10 % (exprimés en  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ).

La capacité d'échange globale a été évaluée à 53 m.e. pour 100 g.

3° Détermination des surfaces spécifiques

Une particule primaire d'argile étant formée par l'empilement d'un certain nombre de feuillets élémentaires, il est aisé de concevoir l'existence de trois types de surfaces :

- les surfaces basales (externes),
- la surface latérale,
- les surfaces interfeuillet (cf figure 3).

L'ensemble formé par les surfaces latérales et basales constitue la surface externe du matériau ; les surfaces interfeuillet quand elles sont accessibles à l'eau et aux cations hydratés, forment la surface interne. Dans ces conditions, seuls les minéraux

expansibles et en particulier les smectites possèdent une surface interne, alors que les illites et la kaolinite ne présentent qu'une surface externe.

a) Mesure de la surface externe par la méthode du BET

La surface externe a été déterminée à partir des isothermes d'absorption de l'azote réalisés à  $-196^{\circ}\text{C}$ . Les molécules d'azote qui ne pénètrent pas entre les espaces interfeuilletés des argiles gonflantes se fixent uniquement sur les surfaces externes. Cette méthode appliquée aux échantillons considérés sous forme calcique donne les valeurs suivantes :

- Kaolinite	: 63 m <sup>2</sup> /g
- Illite	: 130 m <sup>2</sup> /g
- Horizon B	: 118 m <sup>2</sup> /g
- Montmorillonite	: 58 m <sup>2</sup> /g

Ces résultats sont supérieurs à ceux que l'on trouve habituellement au sein de la bibliographie dans le cas de l'illite, de la kaolinite et de l'argile de type H.B. Ils sont plutôt inférieurs dans le cas de la montmorillonite.

b) Conséquences : évaluation de la dimension moyenne des particules primaires

En partant des mesures de la surface externe établies à l'aide des données apportées par la technique du BET, HENIN, CHAUSSIDON et CALVET (1969) ont montré qu'il était possible de déterminer un certain nombre de caractéristiques relatives à l'épaisseur moyenne des particules primaires.

Ainsi, dans le cas de la kaolinite de Provins, qui présente une surface externe de 63 m<sup>2</sup>/g, l'épaisseur du cristallite serait de l'ordre de 150 Å et le nombre de feuilletés superposés les uns aux autres de 20 environ.

L'illite devrait posséder des particules primaires très peu épaissées (70-80 Å environ, donc contenant 6-7 feuilletés), alors que pour la montmorillonite, l'épaisseur de la particule primaire de l'argile calcique serait de 150 Å, soit 15 feuilletés environ.

.../...

Les résultats qui concernent l'argile H.B. sont plus difficiles à interpréter du fait que l'échantillon contient une quantité notable d'oxydes de fer. Néanmoins avec une surface externe de 118 m<sup>2</sup>/g, on peut raisonnablement envisager que l'ensemble constitué par les argiles gonflantes-argiles micacées possède des particules primaires très minces comparables à celles de l'illite (épaisseur voisine de 100 Å°).

### c) Surface totale - surface interne

La surface totale des argiles est déterminée en utilisant un réactif tel que l'éthylène glycol qui se fixe en couche continue d'épaisseur mono ou bimoléculaire, suivant les conditions, sur les divers types de surfaces existant dans les argiles expansibles (surfaces internes et externes).

Cette technique appliquée à l'argile H.B. et à la montmorillonite a donné les résultats suivants :

- H.B.	: 367 m <sup>2</sup> /g
- Montmorillonite	: 813 m <sup>2</sup> /G

Si l'on tient compte de la surface externe évaluée ci-dessus, la surface interne de la montmorillonite serait de 765 m<sup>2</sup>/g et celle de l'H.B. de 250 m<sup>2</sup>/g.

\*  
\* \*

Le tableau III regroupe les données qui caractérisent les matériaux. Ces données, qui concernent la nature des surfaces et les possibilités éventuelles de fixation des cations, donnent une idée de la réactivité des différents matériaux utilisés.

### 4° Caractères morphologiques

Contrairement aux études minéralogiques et physico-chimiques classiques, un travail portant sur le retrait des pâtes argileuses nécessite que l'on puisse décrire, le plus convenablement possible les particules constitutives des différentes argiles. En effet, cette partie descriptive, associée à d'autres données, directes ou

.../...

Tableau III - Données sur les surfaces des argiles ( $m^2 g^{-1}$ ) et sur la capacité d'échange en cations (m.e.  $100 g^{-1}$ )

	Montmorillonite	Horizon B	Illite	Kaolinite
Surface totale	813	367	130	63
Surface interne	766	249	-	-
Surface externe	58	118	130	63
Capacité d'échange en cations	82	53	30	30

indirectes, sera essentielle pour appréhender l'arrangement des particules dans le système poreux et pour caractériser ainsi l'évolution de l'organisation du matériau au cours du retrait.

Toutefois, dans cette première partie du travail, nous n'étudierons les propriétés morphologiques que très succinctement ; ce n'est qu'au cours de la deuxième partie, que nous reviendrons plus en détail sur ces propriétés en les replaçant dans leur contexte et en nous appuyant plus spécialement sur les photos prises à l'aide du microscope électronique à balayage. Ceci étant, il convient de préciser aussitôt que les études effectuées en microscopie électronique sont toujours effectuées sous vide, les unes sur un matériau préalablement dispersé, les autres sur le matériau tel qu'il est en place, mais après dessiccation. Les résultats que nous obtenons nous renseignent donc sur la morphologie des particules à l'état sec ; il est donc possible que, dans certains cas, ceux-ci soient difficilement transposables à des teneurs en eau importantes.

Il est nécessaire d'un autre côté, si l'on veut décrire convenablement les particules participant à l'organisation, de proposer une nomenclature propre à éviter les confusions au niveau des termes utilisés. A cet effet, nous nous référerons, d'une part, aux données microscopiques de MERLING et OBERLIN (1971) portant sur les minéraux 2/1 expansibles, et d'autre part, à une terminologie définie par VAN OLPHEM (1963) et portant sur le mode d'association des particules argileuses en suspension.

Précédemment, nous avons déjà été amené à définir le feuillet élémentaire et la particule primaire. Mais au sein d'un minéral argileux les particules peuvent s'associer de diverses manières : d'abord bord à bord (edge to edge) et face-face (face to face) et constituer des sortes agrégats dont la forme et les dimensions peuvent être très variables (\*) ; lorsqu'un agrégat constitué

---

(\*) Dans certaines argiles, l'opération de dispersion mise en œuvre lors de l'analyse granulométrique arrive à disloquer plus ou moins les agrégats, mais elle s'arrête très souvent au niveau d'une particule constituée en général de plusieurs particules primaires associées bord à bord, qu'on désigne sous le nom de particule libre.

de plusieurs particules primaires intervient dans l'organisation du système poreux du matériau, il joue alors le rôle d'une sorte "d'unité morphologique"

De même, ces unités peuvent s'associer entre elles de différentes façons et notamment face-face (F.F) et bord-face (B.F) c'est à cette nomenclature que nous nous référerons pour décrire l'association des particules observées au microscope électronique.

#### a) Kaolinite :

Les particules de ce minéral observées au microscope électronique sont des particules primaires : elles apparaissent sous la forme de plaquettes hexagonales très bien délimitées, dont le diamètre, proche de 0,2  $\mu$  est relativement homogène (cf page 92).

Ces données morphologiques paraissent en contradiction avec les résultats obtenus en diffraction X, où nous avons mis en évidence un certain désordre dans l'empilement. Il n'y aurait donc pas obligatoirement concordance entre la nature ordonnée de l'empilement et la morphologie liée à la présence de contours incertains. Cette constatation avait déjà été formulée par FLEURENCE et NICOLAS (196

L'examen des cristallites sur la tranche montre que l'épaisseur avoisine 200  $\text{Å}$ . Notons que cette valeur est proche de celle évaluée à partir des surfaces externes (150  $\text{Å}$ ).

#### b) Illite

Les observations effectuées sur ce matériau montrent que les particules considérées sont en réalité des agrégats non dispersables de particules primaires juxtaposées et empilées les unes sur les autres.

Les agrégats sont de taille et de forme variable, (0,1 à 0,8  $\mu$ ), le diamètre de chaque particule primaire étant de l'ordre de 500  $\text{Å}$  (cf page 148).

La distribution granulométrique des amas de cristallites, ainsi que leur forme et leur architecture, interviennent dans tous les problèmes relatifs à l'arrangement éventuel des agrégats et jouent certainement un rôle important dans le comportement physique et mécanique des matériaux.

.../...



c) Montmorillonite

Cette argile apparaît au microscope électronique sous la forme classique de rubans très chiffonnés, dont il est difficile d'apprécier la dimension, du fait que ceux-ci sont constitués par des particules primaires associées bord à bord et forment en quelque sorte des associations continues (cf page 121)

Au sein des rubans, nous avons pu distinguer toutefois une sorte de sous-structure, dont la maille oscille autour de 0,1 à 0,2  $\mu$  de diamètre.

L'épaisseur d'un ruban paraît être de l'ordre de 200  $\text{Å}$ .

Dans la montmorillonite, l'opération de dispersion conduit plus ou moins, suivant les cas, à une séparation des différents éléments constituant les rubans et aussi à la mise en évidence de particules libres.

d) Horizon B

Le problème ici est plus délicat du fait que cette argile est constituée par un mélange

- . d'illite
- . de kaolinite
- . d'argiles expansibles, auquel s'ajoute 10 % environ d'oxydes et d'hydroxydes de fer.

Les études microscopiques font apparaître néanmoins

- d'une part, des particules hexagonales, qui sont de toute évidence kaolinitiques
- d'autre part, des agglomérats de particules primaires mesurant de 0,3 à 2  $\mu$  de diamètre et formés par un très grand nombre de particules primaires associées bord à bord et superposées face à face (cf page 171).

Il ne semble pas y avoir de différences morphologiques entre l'illite et les argiles gonflantes de l'échantillon. Ceci tend à confirmer que ces dernières proviennent de la transformation du matériau illitique de départ au cours de l'évolution pédologique.



Quant aux oxydes de fer, il apparaissent soit sous la forme de granules indépendants plus ou moins sphériques et dont le diamètre est de l'ordre du  $1/10^{\text{e}}$  de micron, soit en recouvrement notamment sur les faces (001) des particules argileuses.

\*  
\* \*

Le tableau IV récapitule les données relatives à la forme, à la taille et à l'architecture des éléments texturaux (\*) telles que nous avons pu les identifier grâce aux méthodes classiques ou encore les déduire des mesures de surface externe.

---

(\*) les éléments texturaux sont, suivant les argiles, des particules ou des associations de particules suffisamment individualisées pour participer à la constitution texturale des matériaux.

Tableau IV - Taille et forme des différents éléments texturaux

	Montmorillonite	Illite	Horizon B	Kaolinite
Forme des unités morphologiques	rubans, aspect chiffonné	agrégats plus ou moins arrondis	Plaquettes hexagonales (kaolinite) agrégats + exfoliés (minéraux 2/1)	plaquettes hexagonales
Diamètre des unités morphologiques	développement planaire semi continu : très grande dimension # 2 $\mu$	0,1 à 0,8 $\mu$	kaolinite # 1 $\mu$ minéraux 2/1 : 0,5 à 2 $\mu$	# 0,2 $\mu$
Nombre de particules primaires dans une unité morphologique	non chiffrable	de quelques unités à plusieurs centaines	kaolinite : quelques unités maximum Minéraux 2/1 : très variables	une à quelques unités ( $\leq 5$ )
Taille de la particule primaire	Diamètre : indéterminé épaisseur 150 A° maxi	Diamètre : 500 A° épaisseur : 100 A°	kaolinite : diamètre # 1 $\mu$ Minéraux 2/1 :	Diamètre : # 0,2 $\mu$ épaisseur : 150-200 A°

## B - PREPARATION DES ARGILES EN VUE DES ETUDES SUR LES

### PHENOMENES DE RETRAIT -

#### 1° Elimination des impuretés et séparation des fractions argileuses

Les quatre argiles que nous avons retenues lors des études sur le retrait sont issues de matériaux provenant du milieu naturel et renferment de ce fait un certain nombre d'impuretés.

Par des traitements chimiques appropriés, nous avons éliminé tout d'abord la matière organique et les carbonates. Puis, étant donné que la majeure partie des argiles se trouve concentrée dans la fraction dispersée ( $< 2 \mu$ ), il convient de procéder à une séparation de cette fraction en opérant comme dans une analyse granulométrique classique.

En procédant de cette manière, nous aboutissons à une argile relativement pure, qui convient pour la plupart des déterminations réalisées dans les laboratoires de minéralogie.

\*  
\* \*

Toutefois, en ce qui concerne l'utilisation de ces échantillons lors d'études sur le retrait, il est nécessaire de porter plus particulièrement son attention sur un certain nombre de points complémentaires. En effet, nous utilisons un matériau naturel, qui possède donc au départ une organisation ; or celle-ci qui se traduit en général par un certain agencement des particules entre elles, dépend énormément de l'histoire de l'échantillon et en particulier de son histoire géologique ou/et pédologique. Il est bon dans ces conditions de donner quelques indications sur cette question.

#### 2° Problèmes posés par la dispersion des argiles

La dispersion d'un échantillon lors de l'analyse granulométrique vise à supprimer certains liens privilégiés établis entre les particules et qui sont le fait de son histoire.

.../...

Mais l'opération de dispersion ne doit pas pour autant briser certains cristallites ou encore les unités morphologiques qui sont caractéristiques du matériau. Ceci pose en fait tout le problème de l'analyse granulométrique et de ses effets.

Dans le cas présent, en utilisant un dispersant relativement simple qui ne présente pas de propriétés complexantes telle la soude à pH 9,0, les résultats de la dispersion peuvent être résumés de la façon suivante (\*) :

- Dans la kaolinite, toutes les particules séparées sont  $< 1 \mu$  : la dispersion affecte donc pratiquement tous les individus cristallins (particules primaires).
- Dans l'illite, l'opération de dispersion s'arrête au niveau de l'agrégat constitué de particules primaires associées B-B et F-F de taille identique à l'unité morphologique mise en évidence lors de l'organisation du matériau.
- Dans la montmorillonite, il n'est pas possible d'établir un lien entre les données granulométriques et la taille des unités morphologiques repérées en microscopie électronique. Mais, il est certain que les particules séparées après dispersion sont beaucoup plus petites que celles participant à l'organisation du matériau.

Nous voyons donc que l'opération de dispersion s'adressant à des argiles différentes met en évidence des particules dont l'architecture est variable et parfois différente de celle des unités morphologiques.

### 3° Choix d'un cation saturant la capacité d'échange

L'argile ayant été dispersée, il convient de choisir un cation convenable pour saturer la capacité d'échange. Il s'agit là d'un point important, car si en effet, le comportement hydrique de argiles dépend avant tout des propriétés structurales du minéral considéré, il est connu depuis longtemps qu'une même argile, suivant qu'elle est calcique ou sodique par exemple, peut présenter des propriétés différentes.

(\*) Nous reviendrons plus en détail sur cette question dans la 2<sup>e</sup> partie et pour chaque argile dans le paragraphe : effet de dispersion.

.../...

L'étude du retrait ne peut donc être envisagée que pour une saturation homoionique déterminée. Comme dans les régions tempérées, c'est le calcium qui constitue normalement l'élément prédominant du complexe d'échange, nous avons utilisé ce cation pour saturer nos argiles.

Ainsi, le problème du comportement des argiles dans les milieux non calciques, tels les sols alcalins (sols sodiques) ou les sols fortement désaturés (milieux aluminisés), ne sera pas abordé ici.

#### 4° Extraction de l'argile

Partant de ces différentes considérations, la préparation des échantillons a été réalisée en adoptant, à nos expériences, le protocole préconisé par ROBERT et TESSIER (1974) en vue des études minéralogiques.

Nous allons résumer les différentes étapes de cette préparation en ne mettant l'accent que sur les particularités propres à chaque minéral.

L'échantillon d'illite contenant au départ de la calcite, il était indispensable de dissoudre au préalable les carbonates avec de l'acide chlorhydrique au 1/10<sup>e</sup> et en maintenant le pH au-dessus de 3,5. Puis, de la matière organique étant présente dans tous les échantillons, il a fallu la détruire à l'aide d'un traitement classique à l'eau oxygénée électro.

Ultérieurement, l'argile a été saturée avec du sodium, puis dispersée par agitation mécanique dans une solution contenant de la soude à pH 9. Les prélèvements correspondant à la fraction  $< 2 \mu$  sont alors effectués en se référant aux normes de l'analyse granulométrique par sédimentation, établies d'après la loi de STOKES.

La suspension d'argile recueillie est ensuite neutralisée avec HCl à pH 6,5, puis rendue calcique grâce à trois échanges en présence d'une solution de  $\text{CaCl}_2$ . On élimine enfin les chlorures en excès par une série de lavages à l'eau distillée.

L'argile est alors recueillie par centrifugation (durée : 20' à 3000 tours/mn).

### 5° Conditions de conservation des échantillons

La conservation des échantillons, tels qu'ils sont récupérés, constitue un problème important pour la suite de ce travail.

En effet, d'une part, le matériau ne doit pas acquérir une organisation qui modifierait sensiblement son comportement lors des expériences ultérieures ; il est donc nécessaire de le conserver très humide ;

- d'autre part, il faut le mettre à l'abri des pollutions bactériologiques, qui pourraient avoir aussi des effets perturbateurs.

Dans ces conditions, après centrifugation, nous avons homogénéisé et placé le matériau à l'abri de l'air, dans un réfrigérateur dont la température est maintenue à 4°C. Les teneurs en eau des différents échantillons obtenus par centrifugation sont les suivantes :

- Montmorillonite	: 1200 ‰
- Kaolinite	: 300 ‰
- Illite	: 165 ‰
- Argile H.B.	: 210 ‰

Toutefois, en ce qui concerne la montmorillonite, nous avons amené l'argile à 800 ‰ d'eau par un séchage progressif à 4° en laissant ouvert le récipient contenant la pâte argileuse.

### 6° Conclusions et plan des essais

En adoptant la méthode de préparation indiquée, nous avons abouti ainsi à une pâte argileuse, dont l'humidité est variable suivant le type d'argile.

En fonction des objectifs, fixés au départ, les différents problèmes expérimentaux qui se posent alors sont les suivants :

- amener les argiles par paliers successifs à des humidités de plus en plus faibles et observer le retrait qui en découle,

.../...

- obtenir chaque palier en appliquant aux différents matériaux un état de contrainte bien déterminé. Pour une contrainte donnée, et à l'équilibre, il devient tout à fait plausible de comparer les matériaux entre-eux.

\*  
\* \*

**Nous examinons** dans un premier temps comment on peut amener les matériaux à une contrainte donnée. Puis nous considérerons, quelles sont, compte tenu des caractéristiques de ceux-ci, les méthodes adaptées à la caractérisation des 4 matériaux dans les différents états de contrainte envisagés successivement.

.../...



C. - CARACTERISATION HYDRIQUE DES PÂTES ARGILEUSES ET DEFINITION  
DU PROTOCOLE EXPERIMENTAL -

Comme cela a été exposé précédemment, la pâte argileuse telle qu'elle vient d'être préparée, est constituée d'unités morphologiques, dont la taille, la forme et l'architecture varient d'un minéral à l'autre.

Ces unités morphologiques juxtaposées les unes aux autres au sein de la pâte ménagent entre elles des vides. A ce niveau, le matériau possède donc une porosité texturale, qui, aux fortes humidités, est essentiellement occupée par de l'eau. Dans ces conditions, amener un tel matériau à des teneurs en eau de plus en plus faibles, revient en fait à extraire progressivement de l'eau. Aussi avant d'aborder l'étude expérimentale de ce problème, il nous a semblé utile de rappeler un certain nombre de données relatives à l'état et à la circulation de l'eau dans un corps poreux, et en particulier dans celui qui intéresse le plus les agronomes et les physiciens du sol, c'est à dire le sol.

1° Paramètres caractérisant l'état et la circulation de  
l'eau dans un corps poreux

Différents auteurs parmi lesquels nous citerons HALLAIRE (1953), HALLAIRE et BALDY (1963) HENIN (1973) envisagent le sol comme un corps poreux, au sein duquel les fluides peuvent se déplacer. A cet effet, ils font appel à différents potentiels qui permettent d'interpréter les mouvements des fluides ; ce sont :

- le potentiel cinétique,
- le potentiel dû à la pression hydrostatique  $\Phi_1$ ,
- le potentiel newtonien  $\Phi_2$ ,
- le potentiel capillaire

Voyons comment ces différents potentiels interviennent dans les corps poreux qui nous intéressent :

- Le potentiel cinétique n'intervient que pour des déplacements rapides d'un liquide au sein d'un corps poreux. Ce n'est pas le cas pour nos pâtes argileuses dans lesquelles, étant donné

.../...

les caractéristiques du matériau de départ (éléments texturaux voisins du micron), les vitesses de déplacement de l'eau sont toujours très faibles.

- Le potentiel dû à la pression hydrostatique  $\Phi_1$  et le potentiel newtonien  $\Phi_2$  (champ de la pesanteur) dépendent de 2 éléments :

. a) la hauteur de la colonne du liquide au-dessus du plan de référence, quand l'échantillon est saturé ; notons que dans ces conditions, il est nécessaire de tenir compte de l'épaisseur de l'échantillon ;

. b) la densité de liquide.

Pour un échantillon saturé en eau et d'épaisseur donnée, le potentiel total est égal à l'épaisseur du liquide au-dessus du plan de référence, c'est à dire à l'épaisseur de l'échantillon. On voit que, pour des échantillons très humides et saturés, ces deux potentiels peuvent intervenir ; toutefois lorsque les échantillons ont une faible épaisseur (1 cm), ils sont pratiquement négligeables (1 g/cm<sup>2</sup> = pF zéro).

- Le potentiel capillaire enfin, intervient dès que le matériau n'est pas saturé. Il est mis en jeu du fait que l'eau contenue dans les pores du sol est alors retenue avec une certaine énergie de liaison, qui dépend de la cohésion du liquide (tension superficielle) et de l'adhésion de celui-ci aux parois du solide (liaisons de Van der Waals). Dans les pores, apparaissent donc des ménisques, qui selon la loi de JURIN-LAPLACE soumettent le liquide à une pression  $P = \frac{-2 A \cos \alpha}{r}$  (figure 9)

où A est la tension superficielle de l'eau,

$\alpha$  l'angle de raccordement du ménisque,

r le rayon du capillaire cylindrique équivalent

Pour une pression P donnée, compte tenu de la tension superficielle et de l'angle de raccordement à l'interface eau-solide on définit un rayon du pore équivalent.

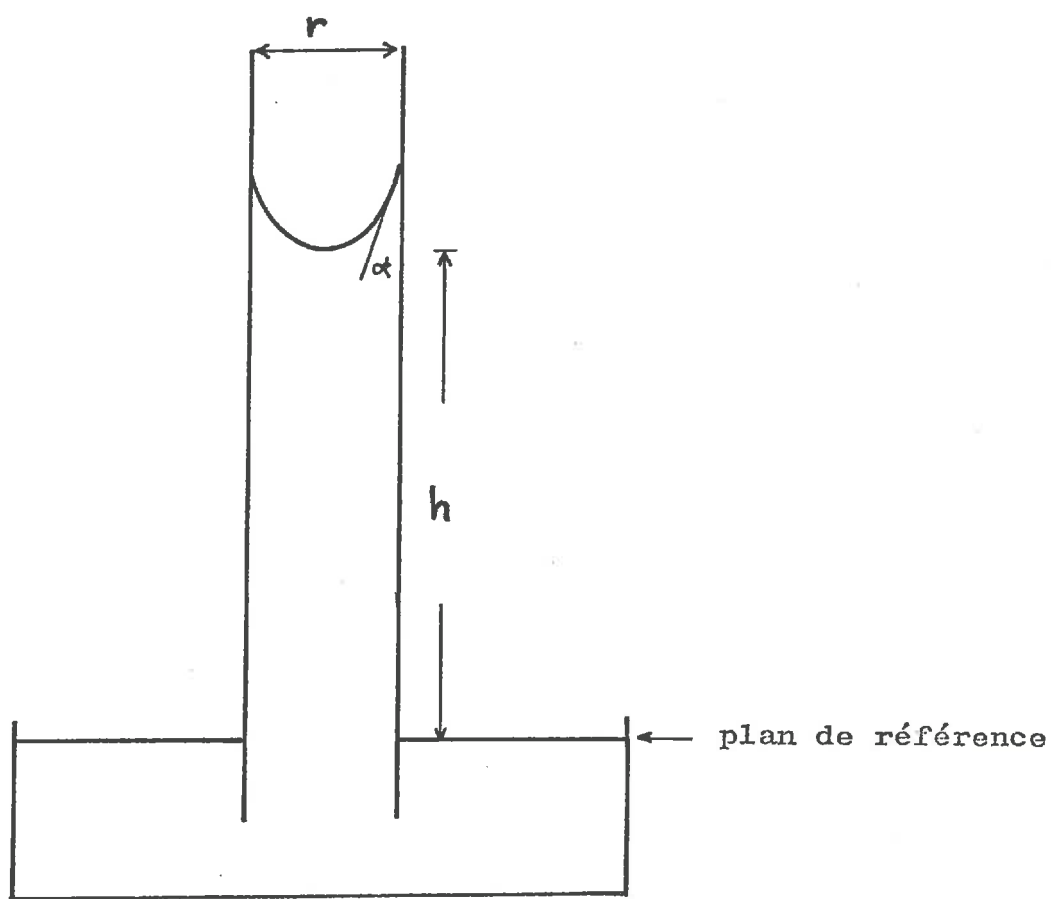


Fig. 9 - Schéma montrant l'ascension d'un liquide dans un tube capillaire

Ainsi, pour un corps poreux rempli par de l'eau,  $\sigma = 0$  et  $\Delta = 75 \text{ dynes cm}^{-1}$  à  $4^\circ\text{C}$ , le liquide est soumis à une pression  $P \text{ g/cm}^2 = \frac{0,153}{r} \text{ (cm)}$

Or, ceci signifie que si on applique au système poreux une pression  $P$ , celle-ci est suffisante pour vider tous les pores dont le rayon est supérieur à  $r$ .

Cette prise en considération du rayon équivalent permet de comparer différents matériaux entre eux. En soumettant des matériaux à des pressions croissantes, on vérifie ainsi l'existence d'une certaine gamme de porosité en fonction de la quantité d'eau extraite.

Toutefois, cette eau étant essentiellement d'origine capillaire, nous ne pouvons utiliser la notion de pore équivalent qui dans la gamme des teneurs en eau correspondant à l'état envisagé.

## 2° Définition du potentiel matriciel - Notion de $pF$

Nous avons assimilé notre matériau à un solide, dont l'espace poral est constitué de volumes géométriques simples. En réalité, un sol est composé de minéraux de taille différentes ; de ce fait, le système poreux possède un certain nombre de caractéristiques, qui dépendent de la forme et de la dimension des particules.

D'un autre côté, le mode d'assemblage des éléments constitutifs dépend aussi de la teneur en eau : plus celle-ci est faible, plus les éléments texturaux seront rapprochés les uns des autres.

Enfin il faut ajouter que les argiles présentent des propriétés d'adsorption liées à la nature de l'espèce phylliteux et à celle des cations saturant sa capacité d'échange. Dans ces conditions, compte tenu de la complexité du système poreux des sols (absence de volumes géométriques simples, et présence d'eau absorbée) les auteurs ont été amenés à définir le potentiel matriciel  $\psi$  qui permet d'englober ainsi toutes les contraintes que l'eau subit dans un sol.

Le potentiel  $\psi$  est généralement exprimé en g/cm<sup>2</sup>. Comme  $\psi$  est difficile à manipuler, aux grandes valeurs du potentiel nous utiliserons le paramètre logarithmique proposé par SCHOFIELD, soit :  $p^F = \log \psi$

### 3° Mesure du potentiel matriciel

Cette détermination fait appel à plusieurs techniques suivant la valeur absolue du potentiel considéré :

#### a) Extraction de l'eau sous pression : principe de l'appareil de Richards

Considérons un tube capillaire rempli d'eau, la force qui retient cette eau dans le tube est égale à  $2 \pi r A \cos \alpha$  (loi de LAPLACE). La force, qui tend à faire chasser l'eau est égale à  $\pi r^2 P$ . De ce fait, le tube se videra, si  $\pi r^2 P > 2 \pi r A \cos \alpha$ , soit  $P > \frac{2 \psi}{r} \text{ gcm}^{-2}$

L'appareil de Richards, qui est basé sur ce principe, permet d'appliquer à un échantillon une pression pneumatique telle que, pour une valeur P donnée, l'eau liée avec un potentiel  $\psi < P$  est éliminée.

#### Description de l'appareil : (cf figure 10)

Celui-ci est composé d'une enceinte métallique étanche, à l'intérieur de laquelle il est possible d'établir une pression pneumatique donnée. L'échantillon est contenu dans un anneau métallique de 10 mm d'épaisseur sur 28 mm de diamètre.

- Pour les pressions allant de 0 à 5 bars, celui-ci est d'abord disposé sur une plaque poreuse préalablement saturée d'eau
- Pour les pressions allant de 5 à 25 bars, l'échantillon repose sur une membrane cellulosique.

Les systèmes poreux de la plaque ou de la membrane sont adaptés à la pression que l'on veut appliquer à l'échantillon. A une pression P donnée, celui-ci doit permettre un drainage correct en revanche, elle ne doit pas laisser passer d'air.

$$S = \frac{2A \cos \alpha \times \pi r^2}{R}$$

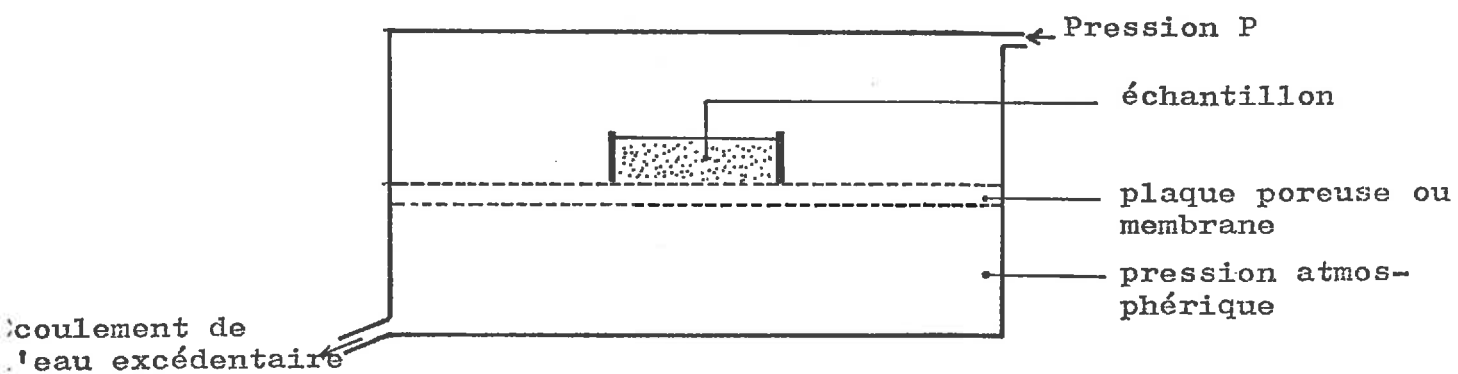


Fig. 10 - Schéma de l'appareil de RICHARDS

Pour les pressions comprises entre 0 et 5 bars, le constructeur a prévu une série de plaques adaptées à chaque domaine d'utilisation (\*). Ainsi, nous avons utilisé des plaques pouvant supporter 1 bar pour les pF allant de 1 à 3 et d'autres plaques pouvant supporter 3 bars lorsque le pF est de 3,5.

L'appareil équipé d'une membrane cellulosique convient pour les pF allant jusqu'à 4,4 ( $\approx 25 \text{ kg/cm}^2$ ) ; au-delà de cette pression, il convient d'employer une autre méthode.

#### b) Utilisation des techniques hygrosopiques

On sait que le potentiel de l'eau peut s'exprimer de différents manières ; ainsi il a été montré que l'on pouvait écrire :

$$\varphi = V \Delta P = RT \log \frac{p_0}{p} = 10,83 T \log \frac{100}{e}$$

où R est la constante des gaz parfaits

T la température absolue

p<sub>0</sub> la pression maximale de la vapeur d'eau

p la pression réelle

e l'humidité relative

V le volume spécifique de l'eau

Dans ces conditions, le fait de laisser un échantillon dans une enceinte à une humidité relative donnée, revient à lui appliquer un certain potentiel  $\varphi$ . Nous avons donc été conduits à nous servir de solutions salines dans des conditions de température bien déterminée. Lorsque les pF sont très élevés, nous avons en revanche préféré utiliser l'acide sulfurique (cf tableau V).

L'examen de la courbe relative à la variation du pF en fonction de l'humidité relative (cf figure 11) permet de constater que l'utilisation des tensions de vapeur est possible avec beaucoup de sécurité pour des humidités relatives comprises entre 5 et 90 %, c'est à dire entre pF 5 et 6,5. Au delà de 95 % d'humidité relative, la méthode devient moins précise, car une très faible variation de la

(\*) Nous ne connaissons pas les caractéristiques exactes du système poreux des différentes plaques et membranes... ..  
utilisées dans l'appareil de Richards. .../...



Tableau V - Valeurs du pF obtenues avec des solutions salines saturées et de l'acide sulfurique de différentes densités.

Solution saline saturée	Humidité relative en pour cent à 20°C	pF
SO <sub>4</sub> , 5 H <sub>2</sub> O	98	4,45
SO <sub>3</sub> , 7 H <sub>2</sub> O	95	4,84
SO <sub>4</sub> , 7 H <sub>2</sub> O	90	5,18
) <sub>2</sub> , SO <sub>4</sub>	81	5,42
Cl	79,5	5,52
NO <sub>2</sub>	66	5,75
N S	47	6,03
I <sub>2</sub> , 6 H <sub>2</sub> O	32,5	6,20
COOK	20	6,37
densité	Humidité relative en pour cent	pF
1,60	8,5	6,55
1,70	3,2	6,70

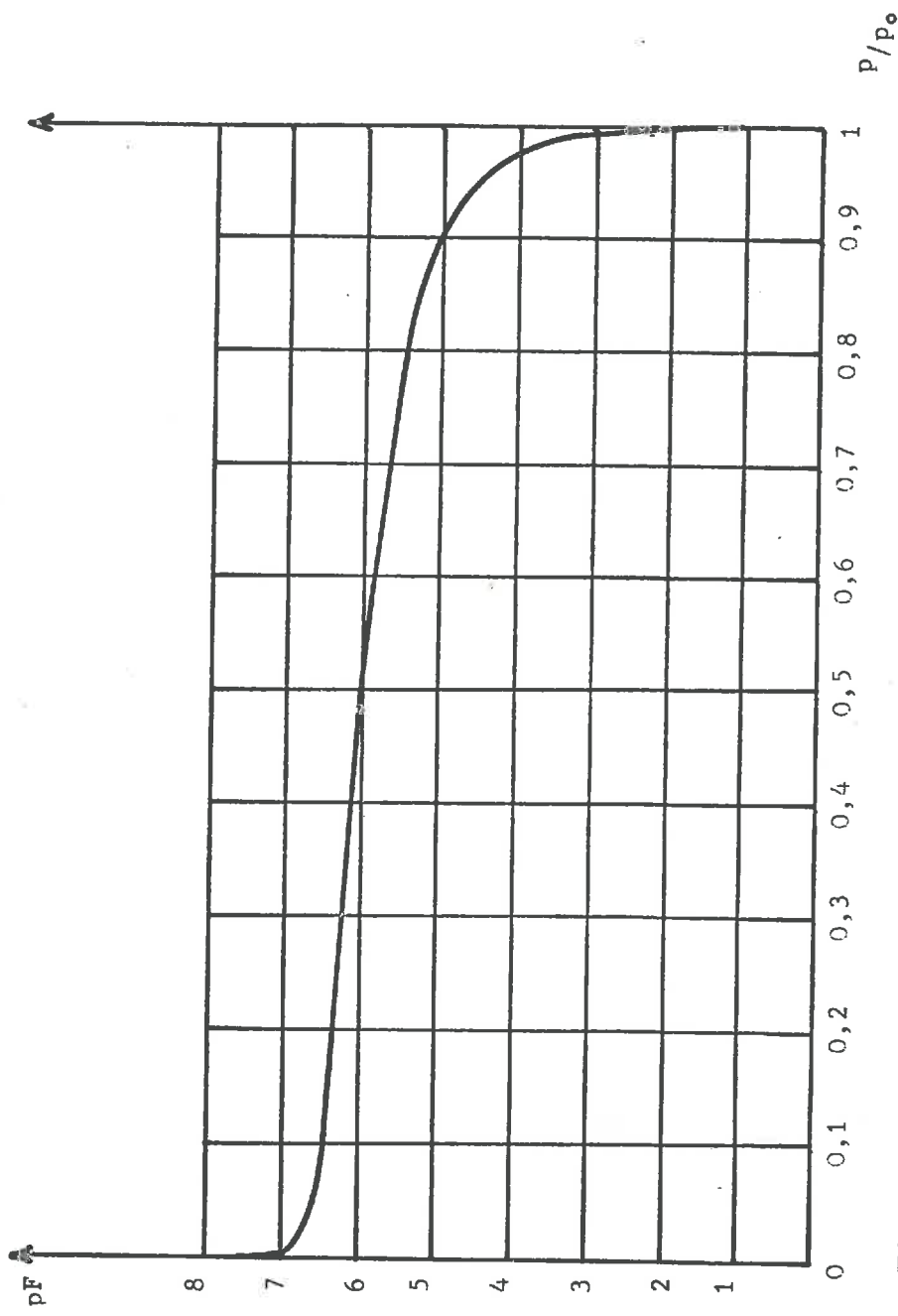


Fig. 11 - Courbe  $p_F$  - pression partielle de vapeur d'eau

température entraîne une variation importante du pF. Néanmoins, en contrôlant celle-ci avec une grande précision, nous avons pu établir un point à pF 4,8.

#### 4° Préparation des gateaux d'argile

La pâte argileuse telle qu'elle a été préparée convient à la confection des gateaux à l'intérieur des anneaux de Richards; Cependant, à ce stade du protocole, il paraît indispensable que le conditionnement du matériau ainsi que les modalités de remplissage des anneaux de Richards facilitent les possibilités de comparaison entre les divers matériaux utilisés.

En effet, la préparation des argiles ayant nécessité un certain nombre de traitements qui peuvent avoir des conséquences vis à vis de l'organisation du matériau, il est possible qu'une orientation mécanique, résultant de la centrifugation ou liée aux propriétés du minéral, apparaisse.

Aussi afin de faciliter les comparaisons entre argiles, nous avons procédé à une homogénéisation préalable des différents matériaux par malaxage. Celle-ci constitue en quelque sorte le point zéro, à partir duquel le comportement des argiles va dépendre des conditions d'application de contraintes identiques.

Sitôt l'opération d'homogénéisation terminée, nous avons rempli les anneaux de Richards à l'aide d'une seringue portant un embout de très gros diamètre (8 mm), de façon à limiter le lissage.

Cela étant, il convient d'assurer au matériau mis dans les anneaux, un retrait qui soit aussi peu dépendant que possible des conditions de l'expérience. Or, comme les pâtons sont déposés sur la plaque poreuse à l'intérieur d'un anneau métallique, il s'avère indispensable de limiter au maximum les forces de frottement mises en jeu au contact des deux supports : c'est la raison pour laquelle nous avons été amenés d'une part à recouvrir les anneaux de Richards d'une mince couche de paraffine, et d'autre part, d'interposer entre la plaque poreuse et le pàton une faible quantité de talc qui jouent essentiellement le rôle de lubrifiant, facilite le retrait latéral.

.../...

Dans ces conditions, à chaque point d'équilibre, il sera parfaitement justifié de contrôler les paramètres caractérisant le volume des pâtons qui, comme nous le verrons, sont d'une grande importance pour préciser les modes d'associations entre particules réalisés au sein des divers matériaux.

#### 5° Conclusion et présentation d'ensemble

Les détails du protocole expérimental ainsi défini et relatif à chaque argile sont indiqués sous la forme d'un tableau récapitulatif (tableau VI). Notons que dans le cas de la montmorillonite, nous avons travaillé au cours de la première phase de l'expérience de 0,25 en 0,25 unité pF, afin de resserrer au maximum les points d'observation.

Tableau VI - Contraintes appliquées aux argiles au cours du protocole expérimental - Domaine des différentes méthodes utilisées

pF	Technique de pression :										Technique hygroskopique :						
	1	1,25	1,5	1,75	2,0	2,25	2,50	2,75	3	3,5	4	4,2	4,4	4,8	5,4	5,75	6,2
Méthode utilisée	Appareil de Richards										Tensions de vapeur						
	Plaque poreuse										membrane cellulosique	Solutions salines saturées	Acide sulfurique de densité variable				
Montmorillonite	pF 1 à pF 3 de 0,25 à 0,25 unité pF et pF 3,5										4 - 4,2 - 4,4	4,8 - 5,4 6,2	6,5				
Kaolinite Illite H. B.	pF 1 à pF 3,5 de 0,50 en 0,50 unité pF										4 - 4,2 - 4,4	4,8 - 5,4 6,2	6,5				

## D - METHODES D'ETUDE DES MATERIAUX -

L'étude du retrait des matériaux argileux nous a conduit à amener de proche en proche ceux-ci depuis des teneurs en eau très élevées jusqu'à des teneurs en eau pratiquement nulles. Aussi, le passage d'un état de dessiccation à un autre se manifeste-t-il par une diminution plus ou moins importante du volume (retrait).

Nous examinerons dans un premier stade les méthodes permettant de préciser le volume apparent de l'échantillon, car elles peuvent être appliquées directement aux gateaux d'argiles.

### I-METHODE D'ETUDE DES CARACTERISTIQUES GLOBALES ET EXTERNES DES ECHANTILLONS

#### 1° Mesure du volume apparent

##### a) Présentation de la méthode

Cette méthode doit conduire à une mesure précise du volume global de l'échantillon. A cet effet, nous avons eu recours aux méthodes couramment utilisées en physique du sol pour déterminer la densité apparente d'un volume d'échantillon de petite taille. Jusqu'à présent, les deux méthodes les plus utilisées sont :

- la volumétrie à mercure
- la méthode au vernis ou à la paraffine

Connaissant le poids sec d'un échantillon, on détermine le volume de celui-ci en mesurant le volume de mercure déplacé (1ère méthode) ou la poussée d'Archimède provoquée par un liquide donné sur l'échantillon enrobé (2ème méthode). Ces deux techniques, quoique assez satisfaisantes pour des agrégats de sols, ne conviennent pas lorsque les échantillons présentent de fortes humidités, d'une part parce qu'ils se déshydratent et d'autre part, du fait qu'ils sont difficiles à manipuler.

Nous avons utilisé une méthode dérivant de celle préconisée par MONNIER, STENGEL et FIES (1973). Celle-ci consiste à mesurer le volume apparent d'un agrégat de sol à partir de la poussée

d'Archimède provoquée sur l'échantillon non enrobé, par du pétrole. En adaptant cette méthode à notre travail, il a été possible d'apprécier sur un même échantillon, le volume, le poids humide et le poids sec.

L'adoption du pétrole résulte du fait que, par rapport aux autres liquides, ce dernier présente certaines qualités : d'une part, il est peu volatil ce qui limite les pertes par évaporation d'autre part, il a peu d'effet sur les minéraux argileux du sol.

Comme nous devons appliquer cette méthode sur des échantillons présentant des teneurs en eau très variables, nous avons été conduits à utiliser deux variantes du protocole habituel de mesure. La première s'applique lorsque les échantillons sont non saturés et friables, donc étudiés à de faibles teneurs en eau. La seconde concerne les échantillons saturés en eau, mais se présentant sous forme de pâte argileuse peu cohérente.

#### b) Application à des échantillons non saturés

Nous procédons ainsi qu'il est indiqué dans la méthode citée en référence : on sature d'abord la porosité accessible au liquide en laissant le gâteau d'argile une ou deux heures dans du pétrole. On sort ensuite l'échantillon et on enlève le film de liquide externe en essuyant celui-ci sur un papier filtre, jusqu'à ce que la surface devienne mate. La mesure de la poussée d'Archimède doit alors être effectuée le plus rapidement possible.

Il est important de procéder de la sorte, car la mesure ne concerne que le volume apparent ; en effet, si le pétrole ne doit pas recouvrir la surface externe du gâteau, il doit néanmoins occuper toute la porosité ; or celle-ci tend à se vider, si l'on n'opère pas rapidement.

#### c) Cas des échantillons saturés

Aux teneurs en eau importantes, les échantillons sont saturés ou très proches de la saturation. Dans ces conditions, il est inutile de plonger ceux-ci dans du pétrole pour saturer la



porosité. De plus, dans le cas des pâtes argileuses, nos essais ont montré que le pétrole n'était pas inactif vis à vis de l'eau et qu'il introduisait une erreur systématique, lorsqu'on laissait celles-ci immergées pendant longtemps.

Ceci nous a conduit à prendre les 2 précautions suivantes :

- ne travailler qu'avec du pétrole saturé en eau
- sur les échantillons très humides ( $> 200 \%$ ), effectuer les mesures rapidement, de manière à éviter les pertes en eau, dans le pétrole ou par évaporation.

d) Détail des manipulations (cf figure 12)

- Pesée de l'échantillon humide - Nous avons utilisé une nacelle en toile métallique fine (maille  $\simeq 1$  mm), sur laquelle le gâteau est posé. Soit  $P_n$  le poids de la nacelle et  $P$  le poids total humide. Le poids de l'échantillon humide  $PE = P - P_n$ .

- Mesure du volume - Quand l'échantillon n'est pas saturé, on l'immerge dans du pétrole et, juste avant la mesure, on enlève le pétrole en excès à l'aide d'un mouchoir en papier. Ceci étant, nous procédons comme il a été indiqué précédemment.

\*  
\* \*

On remplit aux  $2/3$  un bac contenant du pétrole, son poids  $p_0$  est lu sur une balance au  $1/10^{\text{ème}}$  de mg (cf figure 12 bis).

On suspend ensuite la nacelle à une baguette de verre, la partie inférieure contenant l'échantillon étant complètement immergée ; on fait alors une seconde lecture  $p_1$ .

Connaissant la poussée provoquée sur la nacelle seule, on peut en déduire facilement la poussée correspondant à l'échantillon.

- Pesée de l'échantillon sec - Deux cas peuvent se présenter  
- Si l'échantillon est une pâte argileuse, on sort la nacelle et le pàton du bac contenant le pétrole et on place l'ensemble dans une boîte tarée, qui va à l'étuve.

.../...

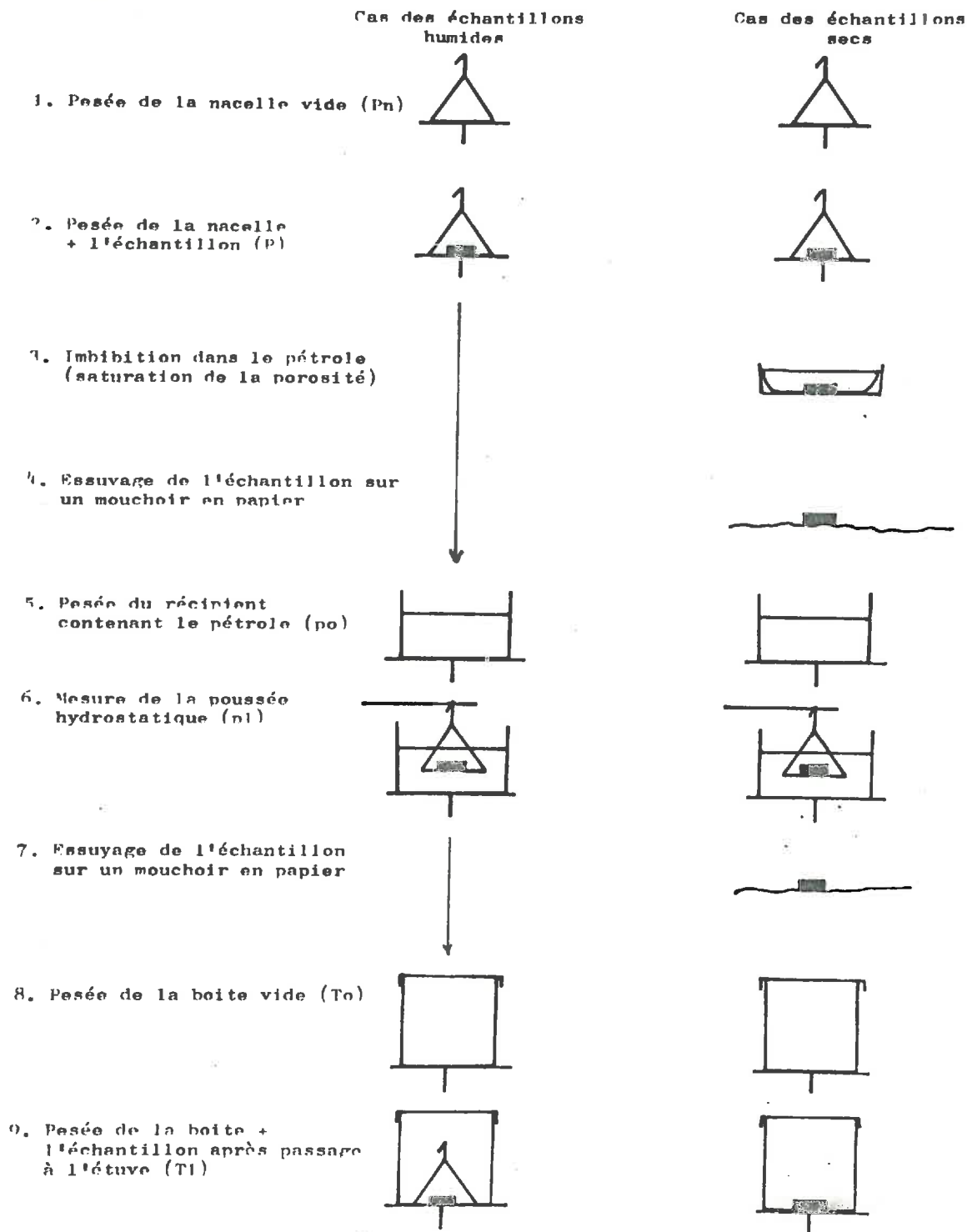


Fig. 12 - Mesure du volume apparent par la méthode au pétrole : détails des manipulations.

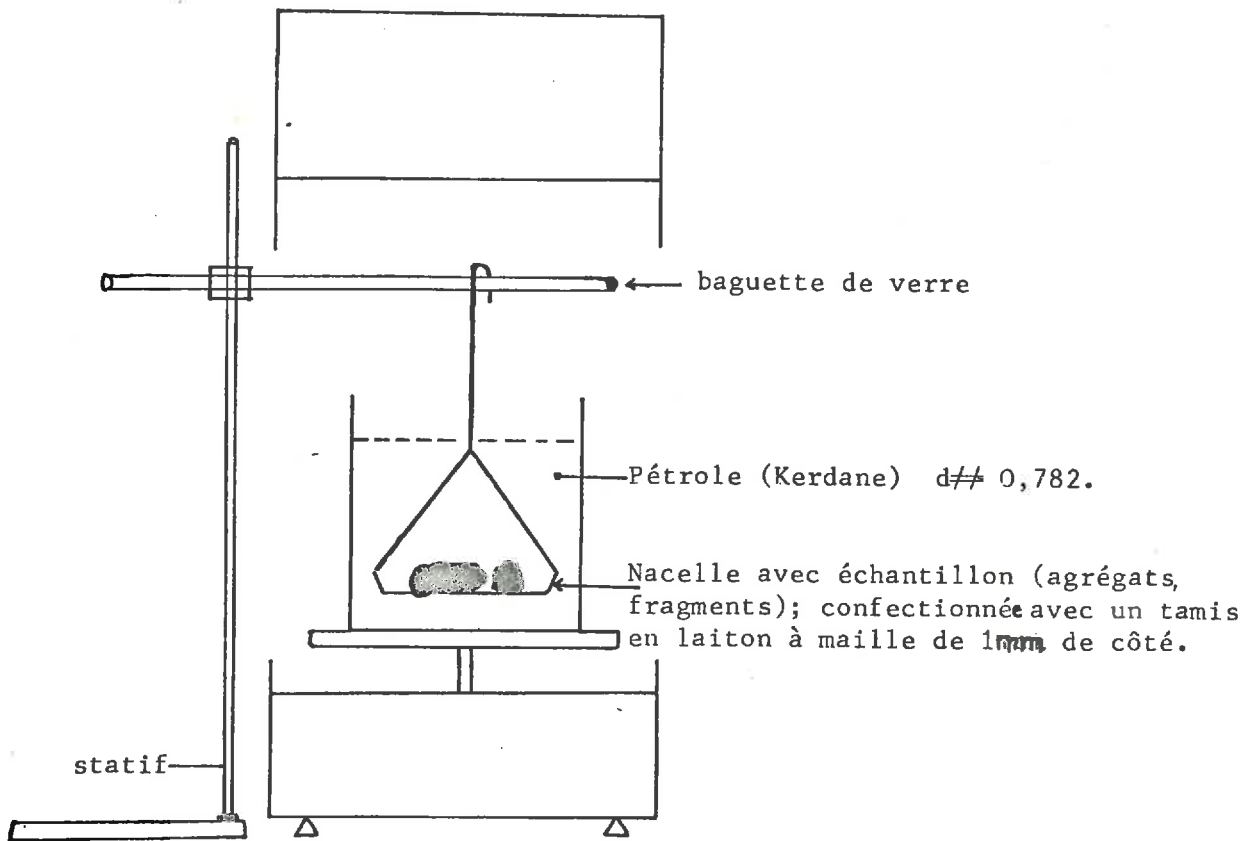


Fig. 12bis: Mesure de la poussée hydrostatique à l'aide d'une balance au 1/10ème de Mg

- Si l'échantillon est cohérent, il n'adhère pas à la nacelle, et il n'est donc pas saturé. Dans ce cas, il vaut mieux essuyer le pâton pour enlever le maximum de pétrole qui sature la porosité, avant de le placer dans une boîte tarée et de le porter à l'étuve.

Connaissant d'une part, les poids de la boîte tarée et de la nacelle, et d'autre part, le poids après passage à l'étuve, il est aisé d'en déduire le poids sec  $P_S$ .

### e) Interprétation des mesures

Ces diverses mesures permettent de déterminer les paramètres suivants :

- Teneur en eau

$$\text{on a : } P = P_n - P_E$$

$$\text{d'où : } P_E - P_S = P_{H_2O}$$

$$\text{Teneur en eau pour 100 g de solide : } \frac{P_{H_2O} \times 100}{P_S} = H$$

- Volume apparent de l'échantillon

$$V = \frac{p_1 - p_0 - p_n}{\rho_{\text{pétrole}}}$$

Connaissant la densité réelle du matériau ( $d_r$ ), on peut calculer sa porosité

$$\text{Comme } \frac{P_S}{D} = V_s \text{ (volume de solide)}$$

la porosité  $P_o$  en pour cent du volume total s'écrit :

$$P_o = \frac{V - V_s}{V} \times 100$$

Ces différentes données peuvent être exprimées différemment ; il est possible pour un poids de solide déterminé de calculer l'occupation de la porosité par les 2 fluides considérés : air et eau.

Les données ramenées à 100 g de solide correspondent à un volume apparent égal à :

$$\frac{V \times 100}{P_S} = V_a \text{ 100 g.s.}$$

Comme la teneur en eau H est connue, et si  $d = 1$ , le volume d'eau pour 100 g de solide  $V_H = H$

Connaissant la densité réelle D, on en déduit le volume occupé par l'air

$$V_{\text{air}} = V_a \text{ 100 g.s.} - \left( V_H + \frac{100}{D} \right)$$

## 2° Problèmes posés par la détermination de la densité réelle

La mesure directe de la densité réelle à l'aide des méthodes classiques (volumétrie à air par exemple) pose un certain nombre de problèmes qui tiennent aux propriétés d'hydratation des minéraux argileux.

Les études thermogravimétriques que nous avons effectuées, (cf figure 5, p.12) montrent que le départ de l'eau d'hydratation des cations s'effectue à des températures élevées ( $> 200^\circ\text{C}$  pour la montmorillonite Ca), en sorte qu'il est quasi impossible de séparer l'eau d'hydratation des cations de celle engendrée par les OH du réseau cristallin. Ceci nous a conduit à utiliser les valeurs théoriques de la densité réelle.

Pour l'illite, la montmorillonite et la kaolinite, compte tenu des dimensions de la maille cristalline et de la formule structurale, nous avons pu calculer les densités réelles. Les évaluations obtenues sont les suivantes :

- Illite	:	2,80
- Montmorillonite	:	2,70
- Kaolinite	:	2,67

Pour ce dernier minéral, nous avons tenu compte du fait que l'échantillon contient 1,6 % de fer, qui a été estimé à l'état d'hématite  $\alpha$   $\text{Fe}_2\text{O}_3$ .

Dans le cas de l'argile H.B., la densité réelle a été déduite des courbes de retrait (cf page 159) ; on a adopté ainsi la valeur de 2,81.

### 3° Mesure des paramètres du volume

Les gâteaux d'argile soumis à des pressions pneumatiques de plus en plus élevées perdent leur eau. L'échantillon étant au départ cylindrique, il a paru intéressant de suivre simultanément la variation de son épaisseur et de son diamètre.

Par rapport aux dimensions initiales  $e_0$  et  $d_0$ , les mesures du volume prennent les valeurs  $e$  et  $d$ . A une contrainte donnée,  $e/e_0$  et  $d/d_0$  sont donc caractéristiques d'une certaine évolution des dimensions du volume.

Ainsi, si  $e/e_0$  décroît alors que  $d/d_0$  reste constant, le retrait affecte seulement l'épaisseur, et peut donc être considérée comme essentiellement anisotrope. En revanche, si les deux paramètres du volume décroissent à la même vitesse, c'est que le retrait s'effectue de manière isotrope.

On peut d'ailleurs mettre en évidence une certaine isotropie ou anisotropie du retrait en faisant le rapport  $A = e/e_0 / d/d_0$ . Si entre deux équilibres successifs,  $A$  reste constant, c'est que le retrait est isotrope. Si, en revanche, ce rapport décroît, tout porte à croire que celui-ci est marqué par une certaine anisotropie.

### Conclusion

Le pied à coulisse permet des mesures au 1/10ème de millimètre. Mais du fait des déformations, 3 ou 4 mesures sont nécessaires pour caractériser convenablement chaque dimension et obtenir une erreur qui se situe dans une fourchette de  $\pm 5\%$ . Ces mesures sont donc assez grossières ; notons en outre, qu'elles ne doivent être appliquées que lorsque l'échantillon reste peu déformé.

## II - DISCUSSION A PROPOS DE LA PRECISION ET DE LA VALIDITE DES MESURES DES CARACTERISTIQUES GLOBALES ET EXTERNES DES ECHANTILLONS -

Notre analyse du retrait reposant sur une détermination précise des caractéristiques globales des échantillons, il convient maintenant de poser d'une manière plus générale le problème de la précision et de la validité des mesures réalisées.

## 1° Distribution des mesures du volume et de la teneur en e

Une étude statistique a été effectuée sur 10 échantillons de montmorillonite soumis à la contrainte  $p_F = 3$  sur une plaque poreuse de 1 bar ; les résultats sont les suivants :

### - Mesure du volume :

- . moyenne : 197,5 cm<sup>3</sup>/100 g solide
- . écart type : 1,57

### - Mesure de la teneur en eau :

- . moyenne : 157,2 cm<sup>3</sup>/100 g de solide
- . écart type : 1,98

Nous constatons que la variation du volume apparent et de la teneur en eau se situe dans un écart type voisin de 2 %. Ceci signifie que, sur une même plaque poreuse, et à  $p_F 3$ , les variations du volume et de la teneur en eau sont de l'ordre de 2 %.

### - Corrélation volume - teneur en eau

Le coefficient de corrélation entre les deux types de données est de 0,93.

La différence des moyennes est de 40,3 et son écart type de 0,25. L'écart type sur la différence des moyennes est donc faible ; aussi nous estimons que les mesures de la teneur en eau et du volume sont corrélées d'une manière convenable.

## 2° Sources d'erreurs systématiques sur les composants du volume

Nous avons établi la formule structurale de la montmorillonite à partir de l'analyse chimique et nous avons attribué pour chaque demi maille deux OH de constitution au réseau cristallin. Partant de cette hypothèse, nous avons soustrait de la perte d'eau totale à 1000°C, la perte due à l'eau engendrée par la décomposition des hydroxyles.



Cela étant, nous pouvons remarquer que la plus grande partie de la courbe du retrait ne colle pas à la droite de saturation de l'argile (cf 2ème partie, figure 27). Une erreur systématique à donc sans nul doute été commise, en sorte que la densité réelle a été légèrement surévaluée.

### 3° Discussion à propos de la relation contrainte - teneur en eau

Les essais que nous avons effectués sur la kaolinite montrent que les résultats peuvent être différents quand on utilise pour un même pF, des plaques poreuses pouvant supporter les pressions limites plus ou moins élevées.

Aussi, pour une pression de 1 bar, en utilisant les plaques poreuses pouvant supporter 1 et 2 bars, les teneurs en eau après 72 h sont respectivement de 79,8 et de 80,4 %.

Ceci signifie que les résultats ont une bonne valeur relative, mais que leur valeur absolue doit être considérée avec prudence, surtout aux faibles contraintes (pF1 = 10 g/cm<sup>2</sup> c'est à dire là où le contrôle des pressions est plus délicat).

Enfin, signalons qu'il est important de laisser les échantillons suffisamment longtemps dans l'enceinte pour que l'équilibre soit atteint : c'est la valeur de 72 h qui a été finalement retenue

### III - CARACTERISATION DE L'ETAT D'ORGANISATION INTERNE A L'AIDE DES METHODES DE VISUALISATION DIRECTE

Nous avons déjà vu que les argiles sont des minéraux qui se présentent toujours à l'état microdivisé sous la forme de particules de dimension égale ou inférieure au micron. Celle-ci possèdent une anisométrie très nette, les faces (001) faisant apparaître un développement planaire particulièrement marqué.

A ces caractéristiques morphologiques très spéciales s'ajoutent des possibilités d'hydratation interparticulaires relativement importantes ; aussi, pour une pâte argileuse donnée,

.../...

l'arrangement des individus cristallins dépend très spécialement de l'état d'hydratation.

Dans ces conditions, les recherches effectuées sur les différents échantillons doivent, d'une part permettre d'observer les particules au sein du matériau en place, et d'autre part, conduire à une certaine estimation quantitative de l'orientation des particules à l'intérieur de l'échantillon.

A cet effet, plusieurs méthodes sont en principe à notre disposition, mais nous n'envisagerons dans ce paragraphe que celle qui permettent une visualisation directe de l'organisation : loupe binoculaire, microscope polarisant et microscope électronique à balayage.

#### 1° Loupe binoculaire

L'examen d'un fragment d'échantillon à des grossissements allant de 6 à 50 permet d'accéder, quand elle existe, à la porosité de fissures de l'échantillon. La loupe binoculaire renseigne donc sur une organisation, dont les éléments possèdent une taille de 0,1 à quelques mm.

#### 2° Microscope polarisant

Celui-ci est utilisable dans une gamme de grossissements qui va de 6 à 1000 : il ne permet donc pas de visualiser les particules élémentaires d'un minéral argileux.

L'utilisation de cet appareil nécessite la confection de lames minces et donc la consolidation des échantillons. Il s'agit là d'une opération délicate, qui risque de perturber l'arrangement surtout lorsque le matériau est consolidé aux fortes humidités.

Ceci étant, la méthode utilisée en lumière polarisée analysée permet d'accéder à une certaine anisotropie optique de l'assemblage. Mais l'interprétation des résultats obtenus nous paraît sujet à caution, du fait qu'il est très difficile d'établir une relation entre les domaines optiques et l'organisation élémentaire du matériau.

C'est pourquoi nous ne présenterons pas, dans ce travail, de données reposant sur l'utilisation de cette technique.

### 3° Microscope électronique à balayage

L'appareil que nous avons utilisé ne permettait pas d'effectuer des observations sur des échantillons humides, sans une lyophilisation préalable. Etant donné les risques de perturbation, nous ne nous sommes servis de cet appareil que sur des échantillons secs et soumis à un vide poussé.

Avec cette technique, les grossissements obtenus atteignent 50 000 et conviennent parfaitement à l'étude des organisations argileuses. En outre, pour tirer le meilleur parti de cet outil, les observations ont été réalisées essentiellement en dirigeant le faisceau d'électrons soit parallèlement, soit perpendiculairement en plan de référence et en appliquant la méthode à des échantillons fracturés (cf pages 91- 92- 118- 119- 121- 145- 147- 148- 169- 170)

### 4° Conclusion

Les méthodes que nous venons de décrire ne permettent pas de procéder à une évaluation quantitative de l'orientation et en même temps de suivre cette orientation en fonction de l'état d'hydratation des matériaux.

Aussi, avons-nous été amenés à rechercher si la diffraction des rayons X pouvait nous apporter des éléments positifs dans le domaine de l'organisation des argiles.

C'est ce que nous allons envisager dans le paragraphe suivant.

IV - CARACTERISATION DE L'ETAT D'ORGANISATION INTERNE : MISE AU POINT D'UNE METHODE BASEE SUR LA DIFFRACTION DES RAYONS X -

INTRODUCTION

De nombreux auteurs se sont intéressés aux problèmes relatifs à l'orientation des particules argileuses du fait en particulier que les minéraux phylliteux possèdent un faciès planaire qui favorise cette orientation. C'est ainsi que dès 1953, BRINDLEY a montré que les diagrammes de poudre effectués sur certains minéraux naturels pourraient être utilisés pour étudier l'orientation. Ultérieurement et à plusieurs reprises, ce problème a été envisagé, mais de manière tout à fait indirecte ; en effet, lorsqu'on veut procéder à des déterminations de composition, l'orientation apparaît plutôt comme une cause d'erreur. Aussi pour les matériaux kaoliniques, Van der MAREL (1962), BRINDLEY (1961), TAYLOR et NORRISH (1966) ont tenté de préciser la variation de l'intensité diffractée en fonction de l'orientation des particules. Plus récemment, TORRENCE MARTIN a même proposé en 1966 pour la kaolinite, une méthode d'étude directe de l'orientation : les études se font alors sur des échantillons naturels, secs ou humide mais après imprégnation par une résine et consolidation. La mesure repose sur la comparaison de l'intensité (002) à celle de la raie (020) ; on détermine ainsi un rapport appelé PR (pick ratio), qui semble caractéristique de l'orientation des plaquettes au sein de l'échantillon étudié.

Enfin, il faut signaler que plusieurs chercheurs ont proposé une formulation mathématique de l'orientation appréhendée au moyen des rayons X ; citons en particulier TAYLOR et NORRISH (1966) et LIPMANN (1969).

1° Principe de la méthode : diffraction des rayons X par un échantillon d'argile orienté(\*)

---

(\*) Nous remercions M. MAMY pour l'aide qu'il nous a apportée dans la partie de ce travail.

a) Cas général : étude et signification d'un diagramme Debye Scherrer (cf figure 13)

Soit un faisceau de rayon AO qui tombe sur un plan  $tt'$ , il diffracte en OR. La direction de la diffraction est donnée par la droite qui joint le centre de la sphère de réflexion de centre O au point où l'extrémité du vecteur réciproque  $\rho$  coupe cette sphère. Ainsi, il existe une réflexion sélective chaque fois qu'un point du réseau réciproque coïncide avec la surface de la sphère de réflexion.

Dans un diagramme de poudre, les réseaux réciproques des différents microcristaux possèdent toutes les orientations possibles et ont leur origine en B. Pour chaque cristallite, le vecteur  $\rho$  étant égal à  $1/d_{hkl}$ , tous les noeuds se trouvant sur la sphère de réflexion dessinent un cercle d'axe OB.

Les diagrammes de poudre donnent uniquement la longueur des vecteurs du réseau réciproque et permettent de calculer  $d(hkl)$ . Mais, dans le cas d'échantillons orientés, il devient possible d'envisager une représentation de l'orientation mutuelle des vecteurs, donc de définir une orientation des particules elles-mêmes.

b) Analyse de l'orientation au sein d'une poudre microcristalline

Considérons un échantillon en forme de plaquette mince d'épaisseur homogène placé perpendiculairement à la direction de propagation d'un faisceau de rayons X cylindrique et d'intensité uniforme. Cet échantillon est constitué par une infinité de cristallites de dimensions sensiblement identiques. Si l'on admet que l'absorption est pratiquement négligeable et qu'il n'y a pas de phénomènes d'extinction, chacun des cristallites placé devant le faisceau de rayons X reçoit la même intensité.

Pour qu'un cristallite participe à la formation d'une raie D.S. d'indice  $(h k l)$ , il faut que la normale aux plans réticulaires  $(h k l)$  fasse avec la direction des rayons incidents l'angle



$\int_0^{\theta} \theta$  (avec  $\theta = \alpha + \Delta\alpha$  qui définit le domaine de réflexion pour l'angle de Bragg  $\alpha$ ). Si  $I(\alpha)$  est l'intensité réfléchie par seconde pour les plans (h k l) d'un cristallite, et s'il y a dans le volume baigné, n normales équivalentes convenablement orientées l'intensité totale diffractée par l'échantillon pour la réflexion (h k l) est  $I = n I(\alpha)$ . Cette énergie est reçue sur le film photographique le long de l'anneau Debye Scherrer. Deux cas peuvent alors se présenter :

1 - La répartition dans l'échantillon des orientations des cristallites est parfaitement isotrope : l'énergie diffractée par les plans d'indice (h k l) est uniformément répartie sur l'anneau D.S. correspondant (cf figure 14).

2 - Certains plans (h k l) des cristallites sont orientés dans des directions préférentielles par rapport aux caractéristiques géométriques de l'échantillon ; dans ce cas, le nombre de normales faisant avec la direction du faisceau incident l'angle  $\int_0^{\theta} \theta$  peut être plus élevé pour une incidence donnée (et pour ces directions) que dans une distribution au hasard. En conséquence, la répartition de l'énergie le long de l'anneau D.S. considéré n'est plus homogène mais présente des valeurs maximales dans les directions des orientations préférentielles correspondant aux normales aux plans (h k l). Dans ce cas, la simple observation des diagrammes D.S. permet donc de détecter aisément d'éventuelles orientations préférentielles des particules cristallines (cf figure 14).

c) Problèmes résultant des phénomènes d'absorption

(cf figure 15)

Soit un faisceau de rayons X de section S normal à un échantillon d'argile homogène et considérons le faisceau diffracté sous l'angle  $2\theta$ . Les rayons X parcourent le même trajet pour chaque point de la tranche dx ; dans ces conditions, l'absorption prendra la même valeur, quelle que soit l'orientation de la particule pourvu que celle-ci satisfasse à la loi de Bragg.

On sait d'autre part, que l'absorption d'un échantillon ne dépend pas du mode d'assemblage des atomes, mais de l'absorption

.../...

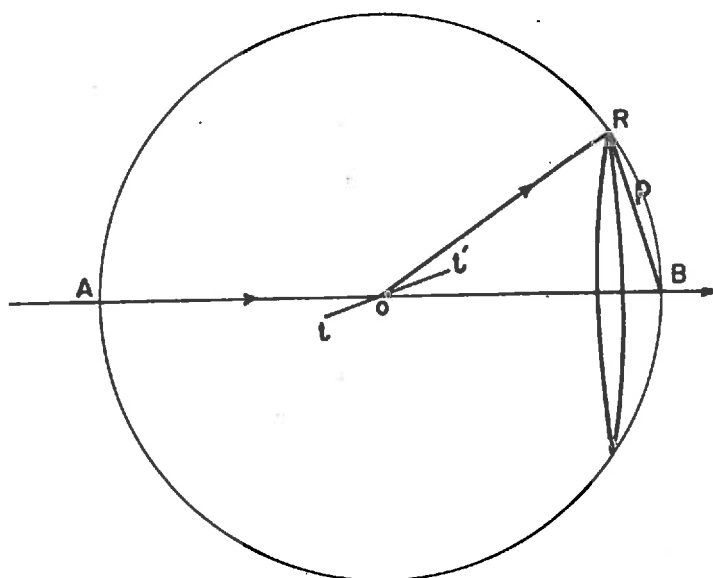


Fig. 13 - Diffraction du rayonnement X par un plan cristallin.

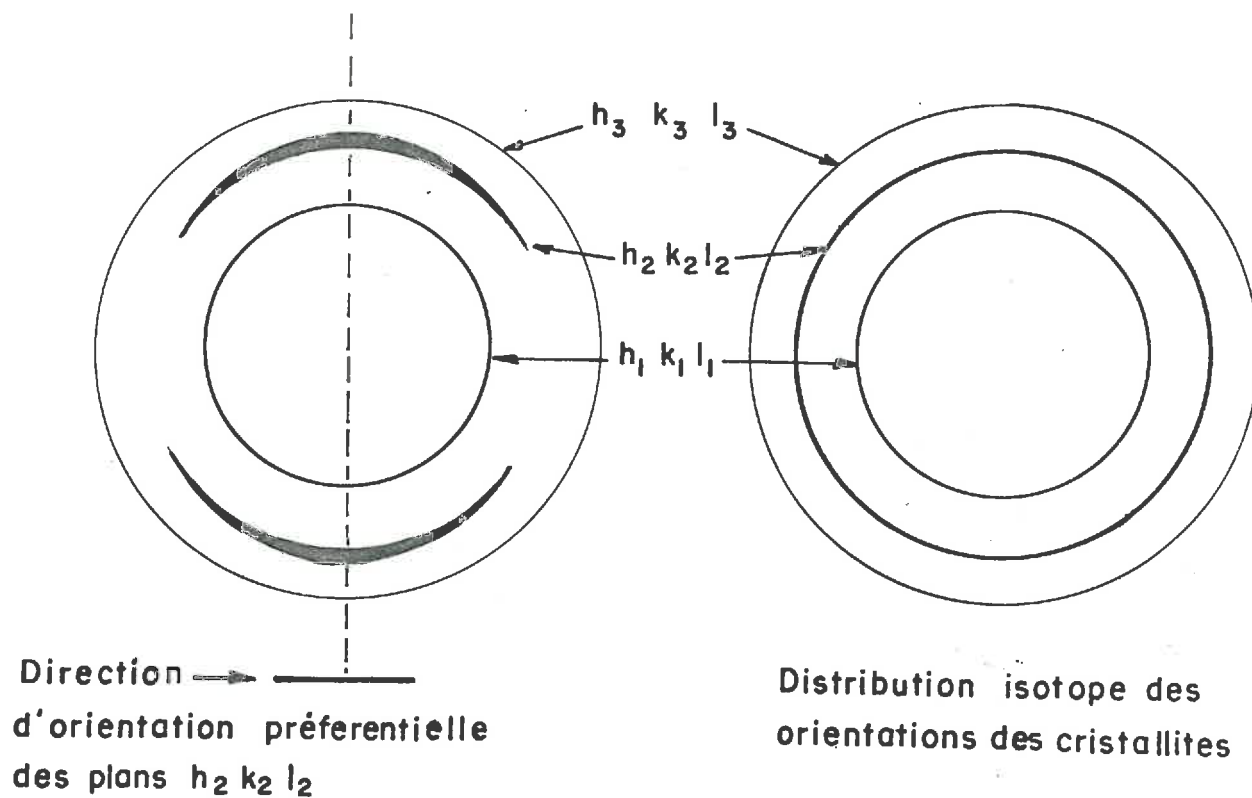


Fig. 14 - Diagrammes DEBYE - SCHERRER.



caractérisant chacun des éléments constituants. On voit donc que dans un échantillon suffisamment homogène et si l'on respecte le montage ci-dessus, l'intensité réalisée en chaque point est affectée du même coefficient d'absorption.

## 2° Réalisation pratique et technique d'utilisation des échantillons

L'étude des matériaux argileux aux très grandes humidités exige tout d'abord, que l'on puisse faire des observations aux petits angles de diffraction.

D'un autre côté, il est impératif d'éviter toutes modifications d'humidité de l'échantillon, donc de son état d'organisation au cours des mesures. Dans ces conditions, il s'avère indispensable de limiter les temps d'exposition et d'empêcher tout contact avec l'air ambiant.

Enfin, il faut noter que l'étude des échantillons par réflexion ne nous semble pas la méthode la plus appropriée, car les diagrammes, dans ces conditions, reflètent la composition de l'orientation des particules superficielles, qui ont le plus de chances, dans notre étude, d'être perturbées. C'est ce qui nous a conduit à préférer une méthode par transmission ; dans ce cas, en effet, le diagramme obtenu intéresse toute la zone traversée par le rayonnement.

### a) Dispositif de diffraction X adopté (figure 16)

Nous avons retenu un dispositif avec chambre plane, qui se rapproche de celui utilisé par BARSHAD dans son laboratoire de l'Université de Berkeley (USA). Le porte-échantillon ainsi que le mode de préparation de l'échantillon ont été en revanche, adopté à ce travail.

#### Chambre plane

Elle est constituée d'un ensemble porte-échantillon collimateur fixé sur le générateur et d'une partie mobile, le porte-film, qui peut être éloigné ou rapproché suivant les besoins.

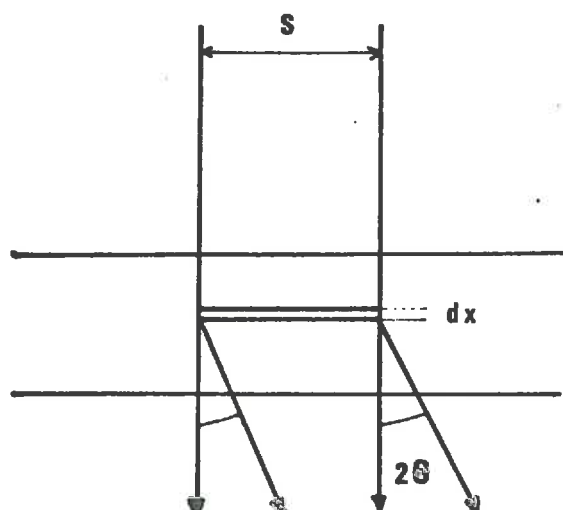


Fig. 15 - Schéma montrant l'absorption du faisceau de rayons X par une tranche d'échantillon.

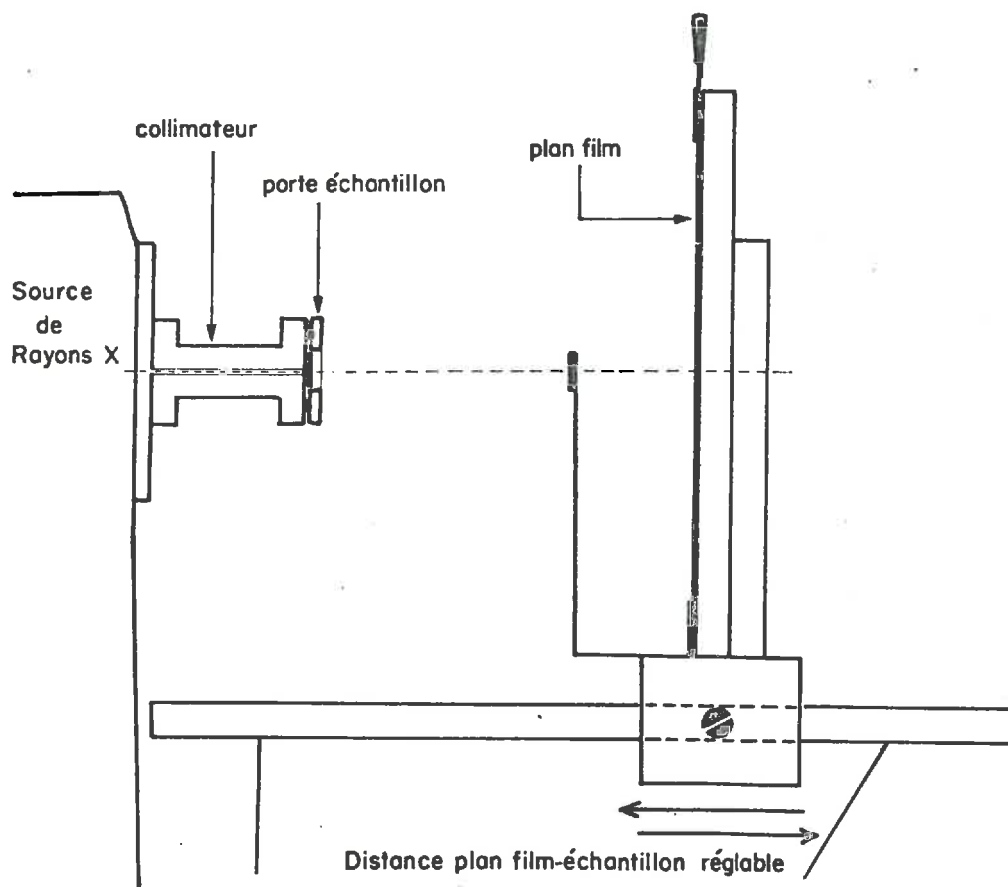


Fig. 16 - Dispositif chambre plane.

Nous avons utilisé un collimateur de 0,5 et de 0,7 mm. Pour éviter les pertes d'énergie, le porte d'échantillon et le collimateur ont été rendus solidaires.

La partie mobile sur laquelle le film est fixé permet une grande souplesse d'utilisation. Ainsi, lorsque les équidistances (001) sont élevées, l'éloignement du plan film de l'échantillon permet de confectionner des diagrammes D.S. dont l'anneau présente un diamètre suffisamment grand pour permettre la réalisation d'une densitométrie correcte. Par exemple, pour une montmorillonite-Ca ( $d(001) = 20 \text{ \AA}$ ), avec une distance plan film-échantillon de 150 mm, l'anneau mesure 25 mm de diamètre.

En revanche, pour les petites distances  $d(h k l)$ , en rapprochant la partie mobile, sur laquelle le film est fixé, du porte échantillon, il est possible d'obtenir un diagramme beaucoup plus complet.

#### Porte échantillon hermétique

Celui-ci a été conçu de manière à éviter tout contact avec l'air ambiant. Deux fenêtres de milar collées à l'araldite assurent le passage des rayons X et délimitent une enceinte dont le volume avoisine 0,15 cm<sup>3</sup>. La fenêtre externe permet de mettre en place l'échantillon. L'étanchéité de l'ensemble est assurée grâce à la présence d'un joint torique.

#### Plans films : qualités requises et mise en place

Afin de limiter au maximum les temps d'exposition, nous avons utilisé un film "Ilford X ray crystallography" à haut contraste et haute sensibilité, qui permet des expositions de très courtes durées : les temps de pose varient en effet de 5 à 30 mn ; notons ici que ce sont les matériaux à forte teneur en eau qui correspondent aux temps les plus courts. Ce film, qui possède un grain fin, permet d'effectuer d'excellentes mesures.

Cela étant, il convient de préciser quelles sont les modalités d'application des rayons X en vue d'une étude de l'orientation

Nous reviendrons plus en détail sur cette question dans le paragraphe d, mais il faut bien préciser au départ que l'étude des phénomènes d'orientation n'est possible que si l'orientation principale des feuillets fait avec le faisceau de rayons X un angle bien déterminé. Lorsque cette condition est remplie et qu'il existe une orientation, l'intensité développée le long des anneaux D.S. est alors essentiellement variable. Il suffit donc de densitomètres la raie concernée pour connaître son intensité relative en chaque point et ainsi en déduire le degré d'orientation.

\*  
\* \*

Examinons maintenant quelles sont les modalités d'application de la méthode pour chaque conditionnement de l'échantillon.

#### Echantillons naturels humides

Nous avons utilisé un fil coupant en tungstène de 2 ou 3/100ème de mm de façon à prélever un échantillon sans le perturber. Le fil est monté sur une pièce en duralumin dont la partie inférieure comporte une face plane. Celle-ci fait un angle connu par rapport au fil (cf figure 17).

#### b) Préparation et présentation des échantillons à analyser

##### - Généralités

Lorsque l'on veut étudier les mécanismes du retrait des matériaux argileux, il est indispensable de disposer d'une méthode qui puisse rendre compte de l'orientation des particules du matériau en place. Or, une telle mesure n'a de sens que si l'on arrive à éviter au maximum les risques de perturbations. Tous les modes de préparation habituels, comme le dépôt sur une lame ou encore la compression de pastilles de volume déterminé sont donc à proscrire.

La technique, qui a été retenue consiste à prélever grâce à un système de coupe approprié un échantillon d'épaisseur déterminée et à le soumettre au faisceau de rayons X. A cet effet, le système de coupe retenu dépend de l'humidité de l'échantillon :

.../...

- utilisation d'un fil coupant pour les pâtes argileuses
- découpage à l'aide d'une scie fine pour les échantillons séchés à l'air et utilisés tel quel.
- ou encore sciage avec une scie diamantée pour les échantillons imprégnés avec une résine.

Ainsi l'échantillon à découper étant disposé sur une pièce métallique plane, il suffit de déplacer latéralement le fil pour découper une tranche, dont les deux bords sont parallèles.

Sur les argiles humides, ce procédé convient à partir du moment où les matériaux acquièrent une cohésion suffisante pour se laisser découper par un fil de faible section.

En revanche, pour des échantillons plus secs, situés par exemple au-delà de la limite de plasticité, la méthode n'est plus applicable.

#### Echantillons secs :

Lorsque les humidités deviennent inférieures à la limite de plasticité, le prélèvement peut être réalisé à l'aide d'une scie à métaux très fine. Toutefois, afin d'éviter l'effritement du matériau, le sciage devra s'appliquer à une tranche de plus forte épaisseur (1,5 à 2,0 mm). Ce n'est que dans un deuxième temps et en utilisant un abrasif (au corindon par exemple), qu'il est procédé à une usure progressive de l'échantillon jusqu'à l'obtention de l'épaisseur désirée, soit 300 à 500  $\mu$ .

Malgré toutes ces précautions, le travail reste assez difficile dès que le matériau s'effrite. C'est la raison pour laquelle, dès qu'un échantillon devient relativement fragile, il est préférable de procéder à une consolidation.

#### Echantillons imprégnés :

Après imprégnation et consolidation par l'intermédiaire d'une résine, les échantillons peuvent être aisément sciés et amincis jusqu'à l'obtention d'une lame d'épaisseur déterminée.

Dans le cas de l'étude aux rayons X, ce mode de préparation présente plusieurs avantages : d'une part, on ne risque pas de destruction lors du sciage, et d'autre part, on contrôle plus facilement l'épaisseur de l'échantillon.

Nota : les essais effectués sur un matériau avec ou sans imprégnation ont conduit à des résultats identiques. La présence de résine ne pose donc pas de difficultés particulières lorsque les échantillons sont en équilibre avec des humidités relatives  $< 95 \%$

### c) Choix de la raie de référence (\*)

Les diagrammes de rayons X caractéristiques des minéraux argileux comprennent 2 sortes de réflexions : les raies (001) qui correspondent aux plans des feuillets (équidistances basales), et les raies (h k o) qui se rapportent aux autres plans du réseau cristallin.

En ce qui concerne les minéraux de la famille des smectites qui sont caractérisés par un empilement de type turbostratique et donc par un réseau bidimensionnel, les réflexions (001) se limitent généralement à la raie (001). En même temps, les raies (h k o) n'apparaissent que sous la forme de bandes, relativement larges, qu'on appelle bandes (h k).

Pour les autres minéraux argileux, la raie (001) apparaît parfaitement, tandis que les ordres supérieurs peuvent être plus ou moins réduits suivant l'état de cristallinité de l'argile.

\*  
\* \*

Ceci étant, le problème qui se pose consiste à choisir la ou les raies qui sont les plus dépendantes de l'orientation. Or, nous savons que les minéraux argileux ont tendance à s'orienter suivant le plan de leurs feuillets ; ce sont donc les raies (001)

---

(\*) Nous avons utilisé un rayonnement  $\text{Cu K}\alpha$  qui permet de bonnes mesures pour les valeurs de  $\theta$  faibles. Quant au rayonnement  $\text{Co K}\alpha$ , il ne convient pas pour ce type de mesure du fait de sa trop faible énergie.

.../...



qui indiquent le mieux l'orientation des cristallites phylliteux au sein des échantillons étudiés.

D'après ce que nous avons vu précédemment, le choix de la réflexion est limité pour les minéraux de la famille des smectites, puisqu'en pratique on ne dispose que de la raie (001). En revanche, pour les autres minéraux argileux, il est possible de retenir (001), (002), (003), suivant les conditions particulières de l'expérience :

#### d) Etude des spectres d'argile orientée

Comme nous l'avons vu précédemment, une argile orientée soumise à un faisceau de rayons X présente dans certaines conditions des anneaux de diffraction qui ne sont pas homogènes ; c'est en effet dans les directions des orientations préférentielles qu'apparaissent les intensités maxima.

Examinons tout d'abord quelle est la signification d'un spectre d'argile orientée et commençons par envisager la diffraction d'un cristallite.

#### ⊗ Diffraction par un cristallite d'argile (cf figure 18)

Un monocristallite peut occuper deux sortes de positions par rapport au faisceau de rayons X :

- la première est celle réalisée quand le faisceau fait un angle  $\theta$  avec le plan (001) du cristallite : la rotation de celui-ci autour de l'axe perpendiculaire à sa face (001) ne produit aucune modification de l'intensité diffractée (cf figure 18-a).

- la seconde concerne toutes les autres positions. Dans ce cas, la diffraction ne se produit que pour deux directions privilégiées, symétriques l'une par rapport à l'autre, et faisant un angle  $\theta'$  avec le faisceau incident (figure 18 b). Ainsi, toute la gamme des orientations différentes de la position (a) conduit obligatoirement à un phénomène de diffraction limité.

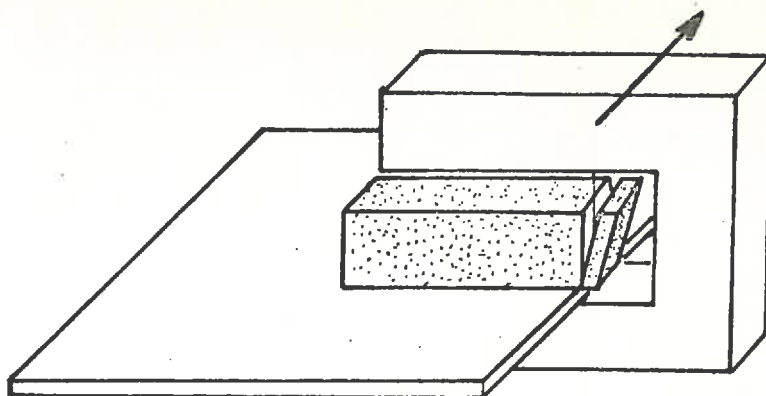


Fig. 17 - Prélèvement d'un échantillon humide

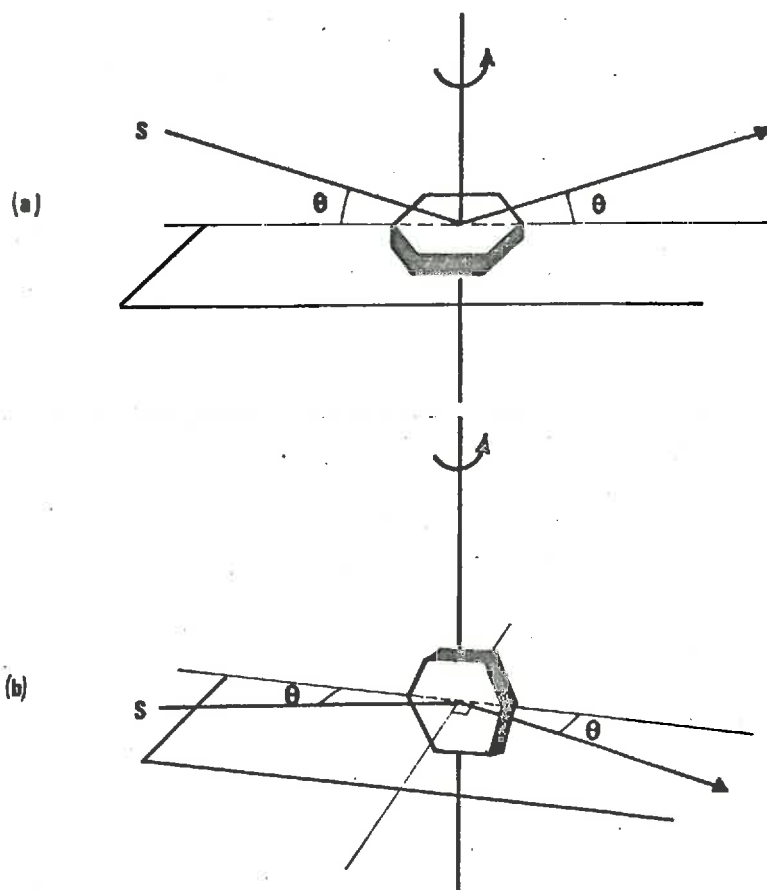


Fig. 18 - Diffraction par un cristallite d'argile occupant deux sortes de positions



### Diffraction par un agrégat d'argile orienté

Comme nous l'avons déjà dit, les spectres de rayons X préparés à partir d'argiles orientées conduisent à des anneaux D.S. hétérogènes. Examinons donc maintenant la signification des intensités maximum et minimum recueillies sur le diagramme.

Pour définir convenablement l'orientation d'une argile, il faut d'abord choisir un plan de référence. Pour toutes nos études, l'orientation a été définie par rapport au plan (P) d'orientation principale : c'est celui qui, parmi tous les plans passant par un point de l'échantillon, contient le plus de feuillets.

Si on dispose ce plan d'orientation principale par rapport au faisceau de rayons X de telle sorte qu'il fasse un angle  $\theta$ , toutes les particules situées dans ce plan vont diffracter en  $2\theta$  (cf figure 18 a). L'intensité diffractée sera alors maximum. Mais on voit immédiatement que cette position est une position limite, car toutes les autres particules situées en dehors du plan d'orientation principale ne vont diffracter que pour deux positions privilégiées des cristallites par rapport au faisceau incident (celles qui correspondent à l'angle  $\theta$  comme l'avait indiqué la figure 18 b).

Le diagramme de rayons X obtenu à partir d'une argile orientée n'est donc pas quantitatif au sens strict du terme, les intensités situées en dehors du plan d'orientation principale étant sous-évaluées.

Au demeurant, nous pouvons attribuer une signification aux diverses intensités diffractées, quant à l'orientation des particules.

En effet, pour un monocristal d'argile dont la normale au plan (001) coupe le plan de base en  $\theta$ , l'orientation est définie par l'angle  $\beta$  que fait la normale au plan de référence au point  $\theta$  avec la normale au plan (001) du feuillet (cf figure 19). Or, il existe 2 positions limites, ce sont :

$-\beta = 0$  ; les plans (001) des cristallites sont parallèles au plan de référence (cristallites les plus orientés).

.../...

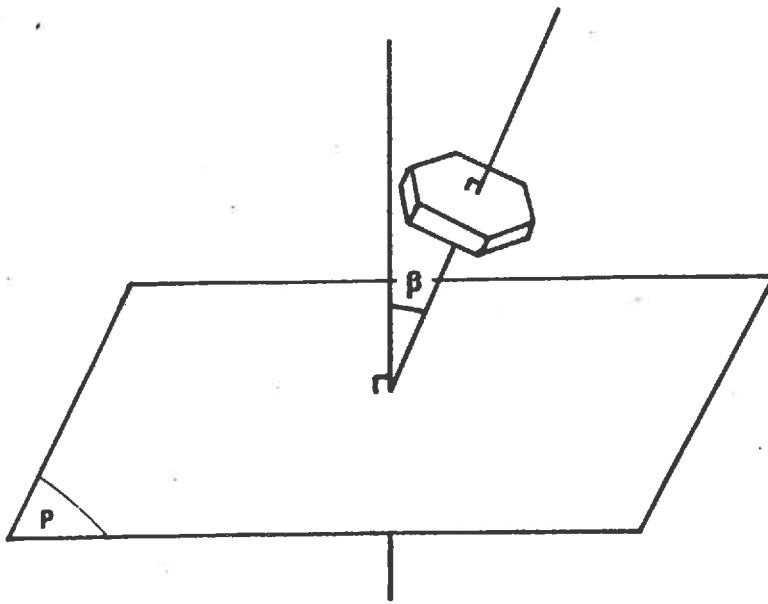


Fig. 19 - Orientation d'un cristallite par rapport au plan de référence

-  $\beta = \frac{\pi}{2}$  ; les plans (001) des cristallites sont perpendiculaires au plan de référence (cristallites les moins orientés).

D'un autre côté, nous savons qu'un faisceau de rayons X diffracte suivant un plan contenant le faisceau incident et la normale au plan (001) de la particule (ceci pour une raie (001)). Dans ces conditions, lorsque l'on soumet un agrégat d'argile orienté à un faisceau de rayons X, il s'agit de préciser pour les positions du plan de référence par rapport au faisceau incident que nous avons adoptées, quelle est la signification des intensités maximum et minimum repérées sur l'anneau quant à l'orientation des particules.

Position 1 : Le plan de référence (P) et le faisceau de rayons X incident sont parallèles

Dans ce cas, nous avons effectué un plan de coupe perpendiculaire au plan de référence (figure 20 a).

Ainsi :

- Les particules dont la normale est  $N_2$  diffractent en I maximum.

Dans ce cas  $\beta = \widehat{N N_2} = \theta$  (cf figure 21 - b c)

- Les particules dont la normale est  $N_1$  diffractent en I minimum.

Dans ce cas  $\beta = \widehat{N N_1} = \frac{\pi}{2}$

- Les particules, dont la normale se situe entre  $N_2$  et  $N_1$  ne peuvent diffracter, car  $\beta < \theta$  ; ce sont pourtant les particules les plus orientées.

Ainsi, il apparaît que le domaine angulaire de l'orientation des particules est limité à  $\frac{\pi}{2} - \theta$  et qu'un angle mort de valeur  $\theta$  empêche les particules les plus orientées de diffracter. Pour les smectites, quand  $d(001) = 20 \text{ \AA}$ ,  $\theta \neq 2^\circ$ , le résultat final risque d'être très peu modifié ; en revanche, pour la kaolinite nous avons été amené à adopter une autre position (position 2).

.../...

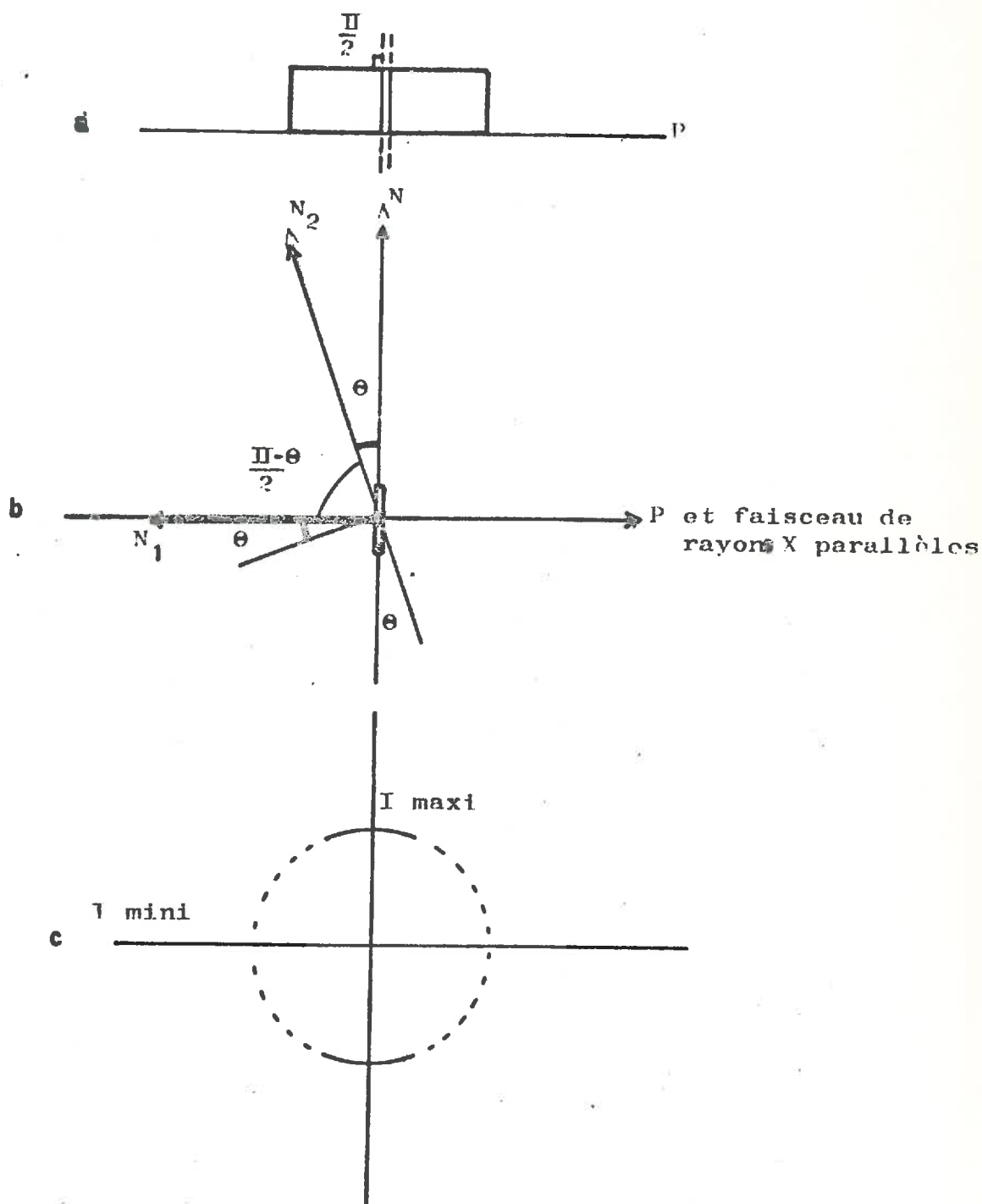


Fig. 20 - Diffraction par un échantillon d'argile orienté quand le plan de référence et le faisceau de rayons X sont parallèles.

- (a) - plan de coupe perpendiculaire au plan de référence
- (b) -  $\widehat{N_1 N_2}$  = domaine angulaire où les cristallites diffractent sur le demi-anneau (c)
- (c) - I maxi obtenu par les cristallites d'orientation  $N_2$  - En I mini diffractent les cristallites d'orientation  $N_1$

Position 2 : Le plan de référence et le faisceau de rayons X font entre eux un angle  $\theta$

Pour réaliser cette disposition, il est nécessaire d'effectuer un plan de coupe dont l'angle est égal à  $\frac{\pi - \theta}{2}$  par rapport à P (figure 21 a).

Dans ces conditions :

- Les particules dont la normale est  $N_2$  diffractent en I maximum  $N$  et  $N_2$  étant confondus ;  $\beta = 0$  (cf figure 21 b-c)
- Les particules dont la normale est  $N_1$  diffractent en I minimum ; dans ce cas  $\beta = N_1 \hat{N} = \frac{\pi - \theta}{2}$
- Les particules dont l'orientation se situe entre  $N_1$  et P ne sont pas prises en compte sur un demi anneau de diffraction: un domaine angulaire mort de valeur  $\theta$  existe à nouveau et il affecte les particules les moins orientées par rapport au plan de référence.

En conclusion, nous voyons que l'étude de l'orientation des particules à l'aide de la diffraction des rayons X est limitée à un domaine angulaire d'orientation, qui est égal à  $\frac{\pi - \theta}{2}$ .<sup>(1)</sup> Plus  $\theta$  est petit, plus le domaine d'étude est important ; par voie de conséquence, nous avons intérêt à retenir la raie (001) plutôt que les réflexions (002) ou (003).

Dans le cas de la kaolinite, nous avons choisi de travailler selon la position 2, en sorte que les particules les plus orientées peuvent diffracter. En revanche, pour les autres argiles, nous avons utilisé un plan de coupe orthogonal au plan de référence. Dans ce cas, l'angle mort affecte les particules les plus orientées; mais les mesures qui ont été réalisées sur les smectites montrent que le résultat final est du même ordre de grandeur que le faisceau soit parallèle à P ou **incliné** à  $\theta^\circ$ . Notons d'ailleurs qu'étant donné qu'il s'agit de minéraux à organisation cristalline imparfaite le nombre de particules situées dans la fourchette  $\pm \theta^\circ$  reste élevé et que, de ce fait, il n'est pas étonnant que les résultats soient très **similaires**.

(1) pour un demi anneau de diffraction

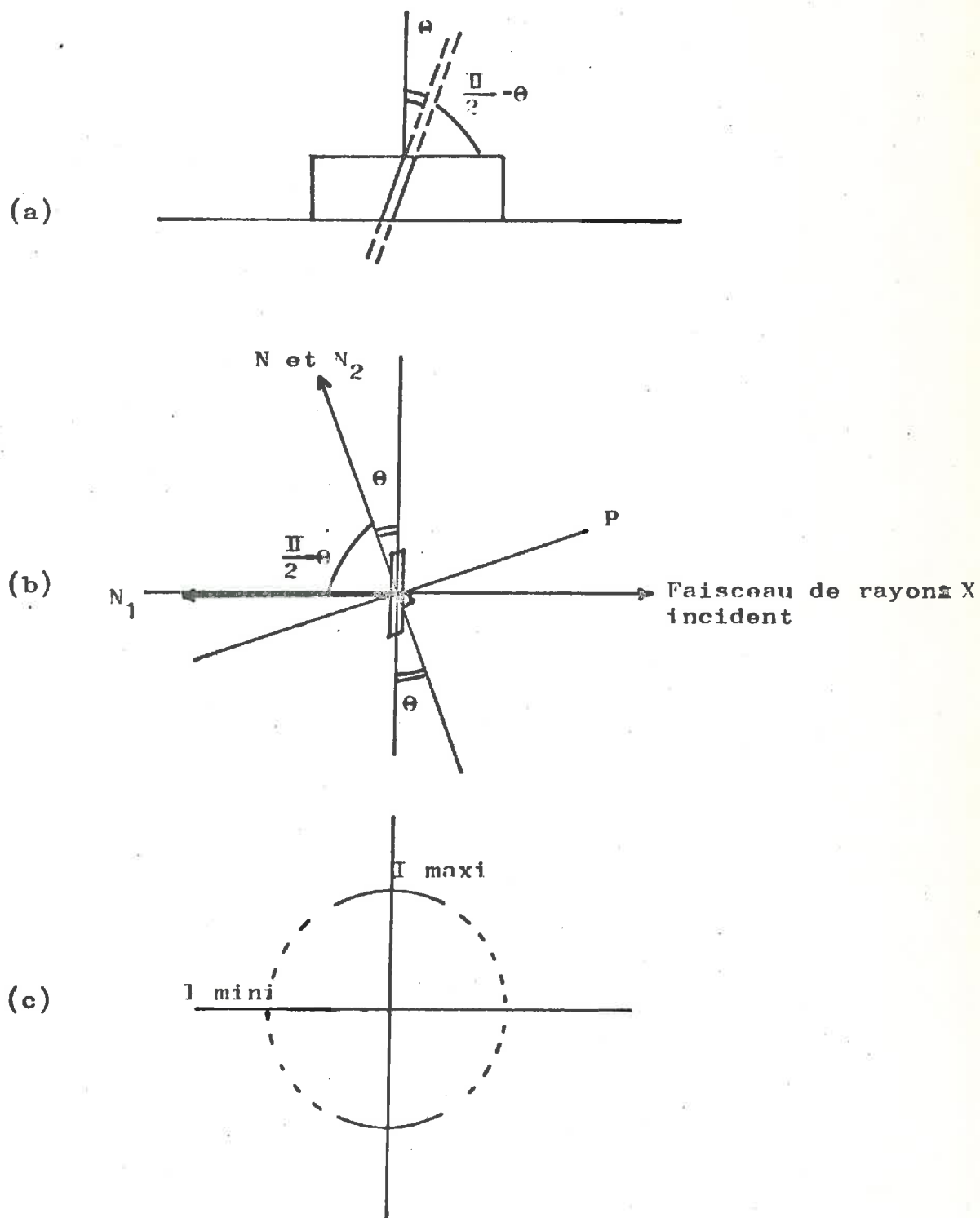


Fig. 21 - Diffraction par un échantillon d'argile orienté quand le plan de référence et le faisceau de rayons X font entre-eux un angle  $\theta$ .

(a) - plan de coupe =  $\frac{\pi}{2} - \theta$  par rapport à P

(b) -  $\widehat{N N_1} = \widehat{N_2 N_1} = \frac{\pi}{2} - \theta$  domaine angulaire où les cristallites diffractent sur le demi-anneau (c)

(c) - I maxi obtenu par les cristallites d'orientation  $N_2$  et I mini par les cristallites d'orientation  $N_1$

Enfin, signalons qu'avec un matériau constitué de plusieurs argiles, nous sommes nécessairement tenus de procéder comme nous l'avons fait dans le cas des smectites.

#### e) Densitométrie

Il s'agit essentiellement d'un problème de mesure de la densité optique du film. Lorsque nous provoquons un noircissement léger de la pellicule (densité optique  $\leq 1$ ), celle-ci est proportionnelle à l'exposition en tout point de la réflexion concernée ; par contre, au-delà de cette valeur, il est nécessaire de se référer à une courbe d'étalonnage.

Les films préparés à partir d'argiles orientées présentent des anneaux hétérogènes et pour un même échantillon, l'intensité diffractée en chaque point de l'anneau dépend :

- de la quantité de matière soumise au rayonnement,
- du temps d'exposition.
- de l'orientation des particules par rapport au faisceau de rayons X.

Comme nous l'avons vu dans la théorie, chaque point de la raie étant affecté du même coefficient d'absorption et du fait que la densité optique reste  $< 1$ , l'établissement de la courbe de densité optique n'implique pas de correction.

Toutefois, par suite des difficultés que l'on a à repérer le centre du film, il n'a pas été possible de suivre la raie point par point sur un demi-cercle. Nous avons donc travaillé par traversées successives de l'anneau, de 6 en 6° minimum.

La densité optique maximum relevée en chaque point est reportée sur un graphique en vue de l'établissement de la courbe de densité optique (cf 2ème partie, pour chaque matériau, étude de l'organisation interne par la diffraction des rayons X).



f) Présentation des résultats

Nous montrons à titre d'exemple deux spectres obtenus à partir d'une kaolinite peu orientée et très fortement orientée (photo 2). Sur des spectres comparables les densités optiques relatives au demi-anneau de diffraction ont été relevées.

Sachant que l'épaisseur de la tranche d'échantillon est variable et que la teneur en eau évolue au cours de l'expérience, les densités optiques absolues ne peuvent être prises en compte. En revanche, nous pouvons établir un rapport des densités optiques maximum et minimum, du fait qu'en tout point la raie concernée est affectée du même coefficient d'absorption.

Ainsi, le rapport  $R = \frac{I_{\text{maximum}}}{I_{\text{minimum}}}$  permet de comparer les spectres entre-eux. Aussi, compte tenu de ce que nous avons indiqué antérieurement, un tel rapport est caractéristique de l'orientation ; mais celui-ci n'est pas un rapport de proportionnalité, car d'une part, les particules situées dans le plan de référence diffractent préférentiellement, et d'autre part la répartition des orientations au sein de l'échantillon obéit à une loi, qui est variable d'un échantillon à l'autre et d'une teneur en eau à une autre.

Au demeurant, sur un même matériau, et pour des hydratations variables, nous pouvons comparer le domaine angulaire de diffraction préférentielle.

L'étude statistique que nous avons effectuée sur un certain nombre de courbes simples des différentes argiles montre qu'il s'agit généralement de courbes d'allure gaussienne. Le domaine angulaire de diffraction préférentielle a été établi en traçant 1 parallèle à mi-hauteur de l'axe des ordonnées.

Il convient de signaler toutefois, que le domaine de diffraction ne se confond pas complètement avec le domaine d'orientation, surtout si  $\theta$  est grand. Le décalage se situe, soit au niveau de  $I_{\text{minimum}}$  (kaolinite) ou de  $I_{\text{maximum}}$  (autres argiles).

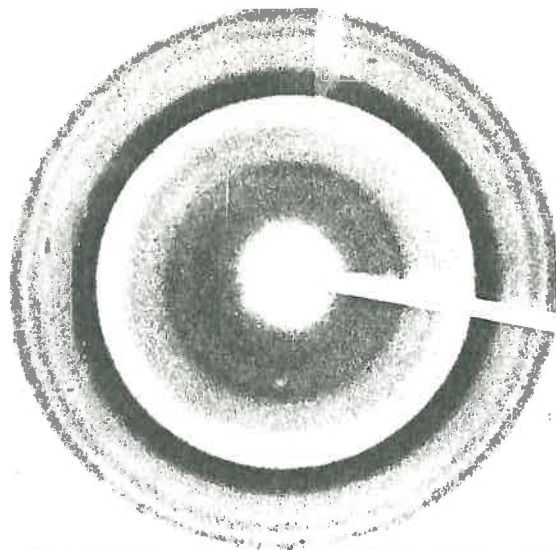
Nous allons appliquer cette méthode à l'étude de l'organisation interne des 4 matériaux argileux au cours des différentes phases du retrait.

\* \* \*

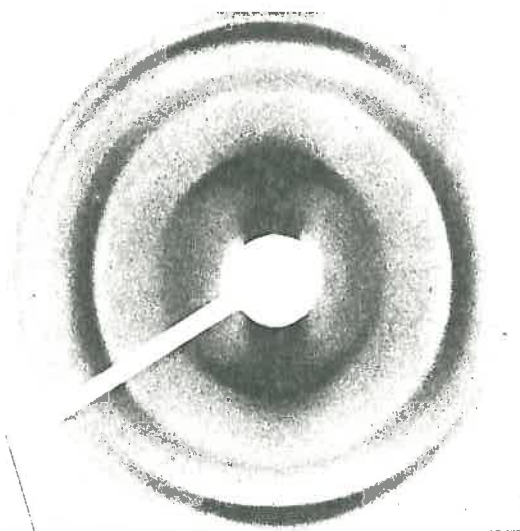
.../...



(a)



(b)



Photos 2 - Spectres de rayons X obtenus à partir de la kaolinite

(a) argile peu orientée

(b) argile fortement orientée

D E U X I E M E   P A R T I E

\* \* \*

ETUDE DU COMPORTEMENT SPECIFIQUE DES 4 TYPES

DE MATERIAUX ARGILEUX

A - KAOLINITE -1° Rappels sur les propriétés générales du matériau utilisé

La kaolinite de Provins choisie pour nos essais, est le prototype des argiles de type 1/1, c'est à dire des argiles qui ne présentent aucune substitution isomorphique et dans laquelle les charges disponibles pour la fixation des cations hydratables ne se trouvent qu'en bordure des feuillets élémentaires.

Elle est caractérisée en outre par des particules de très petite taille ( $\phi < 1 \mu$ ) ce qui nous rapproche le plus possible des kaolinites rencontrées dans les sols. Ces particules sont, ou bien monocristallines, ou bien constituées par une association de 3 ou 4 monocristaux maximum. La granulométrie paraît d'ailleurs très resserrée. Compte tenu de la taille des particules, la réactivité du matériau est bonne : 30 méq pour 100 grammes d'argile avec une surface externe de 63 m<sup>2</sup> par gramme.

L'argile rendue calcique, après avoir été extraite, se présente après homogénéisation au moment de la confection des gâteaux sous l'aspect d'une pâte peu cohérente, mais qui ne s'écoule pas sous les anneaux de Richards.

Ce pâton est soumis alors à des contraintes hydriques de plus en plus élevées. Pour une contrainte donnée et à l'équilibre, nous avons procédé à un certain nombre de mesures et d'observations. Il s'agit de présenter maintenant les résultats découlant de ces diverses mesures.

2° Mesures globales caractérisant le retrait

Nous avons regroupé dans le tableau VIII les données qui concernent les mesures globales effectuées dans le cas de la kaolinite. Nous nous référerons à ce tableau pour retrouver tous les résultats chiffrés, qui ont été regroupés par ailleurs sur les courbes et sous forme de schémas.

Tableau VIII - Mesures globales caractérisant le retrait obtenues sur la kaolinite. Les mesures du volume ont été établies pour un minéral dont la densité réelle est de 2,67 (37,4 cm<sup>3</sup> pour 100 g)

et  $V_{\text{air}} = V_{\text{apparent}} - (V_{\text{eau}} + V_{\text{solide}})$

Intensité de séchage	Volume total pour 100 g de solide	Volume d'eau pour 100 g de solide	Volume d'air pour 100 g de solide	Porosité totale en pour cent	Porosité occupée par l'air (% du volume total)	Quantité d'eau ex- traite en- tre deux équilibres successifs
11e	313,8	276,3	0,1	88,1	-	
	246,2	208,0	0,8	84,8	0,3	
5	212,5	173,9	1,4	82,4	0,6	34,1
	185,6	148,7	-	79,8	-	25,2
5	131,0	92,9	0,7	71,5	1,0	55,8
	118,2	79,8	0,9	63,4	1,6	13,1
5	93,0	54,9	0,7	59,8	0,7	24,9
	81,3	43,8	0,1	54,0	0,1	11,1
2	76,4	38,5	0,5	51,0	0,6	5,3
4	76,9	31,3	8,2	51,4	10,6	7,2
3	64,3	20,5	6,4	41,8	10,0	10,8
4	63,8	5,9	20,5	41,4	32,1	14,6
75	61,4	4,6	19,4	39,1	31,6	1,3
2	61,3	0,3	23,6	39,0	38,5	4,3
5	60,8	0,3	23,1	38,5	38,0	0

Les données qui concernent les mesures réalisées sont de deux types : - soit elles caractérisent globalement le système poreux et permettent en particulier de calculer :

- ) la teneur en eau, le volume d'air, le volume de solide
  - ) la densité apparente ou son inverse le volume spécifique,
  - ) la porosité du matériau et son degré d'occupation par l'eau et par l'air;
- soit elles envisagent le retrait du point de vue des paramètres volumiques ; elles concernent alors les mesures externes effectuées à l'aide du pied à coulisse.

a) Relation volume apparent - teneur en eau (figure 22)

Les résultats sont exprimés pour 100 g d'argile. En présentant les données de cette manière, le volume occupé par la partie solide est identique, soit 37,4 cm<sup>3</sup> pour 100 g ; seul le volume de fluides change.

On constate que l'échantillon est saturé au départ ; en effet, la somme volume d'eau + volume de solide est égale au volume total.

On amène ensuite le minéral à des teneurs en eau plus faibles ; l'échantillon perdant de l'eau, son volume diminue, mais dans la gamme des teneurs en eau allant de 300 % à 38 %, le départ d'eau est compensé par une diminution quasi identique du volume apparent. Dans cette gamme de teneur en eau, la diminution du volume apparent, ou retrait se produit donc en milieu saturé.

En revanche, dans une deuxième phase, de 31,3 % à 20,5 % d'eau, le retrait subi par l'échantillon devient inférieur à la quantité d'eau extraite et à partir de 20,5 %, le volume du gâteau d'argile demeure stable, en sorte qu'on atteint une sorte de limite volumique. C'est cette limite que beaucoup d'auteurs ont appelé "limite de retrait".

Volume apparent  
(cm<sup>3</sup> pour 100 g)

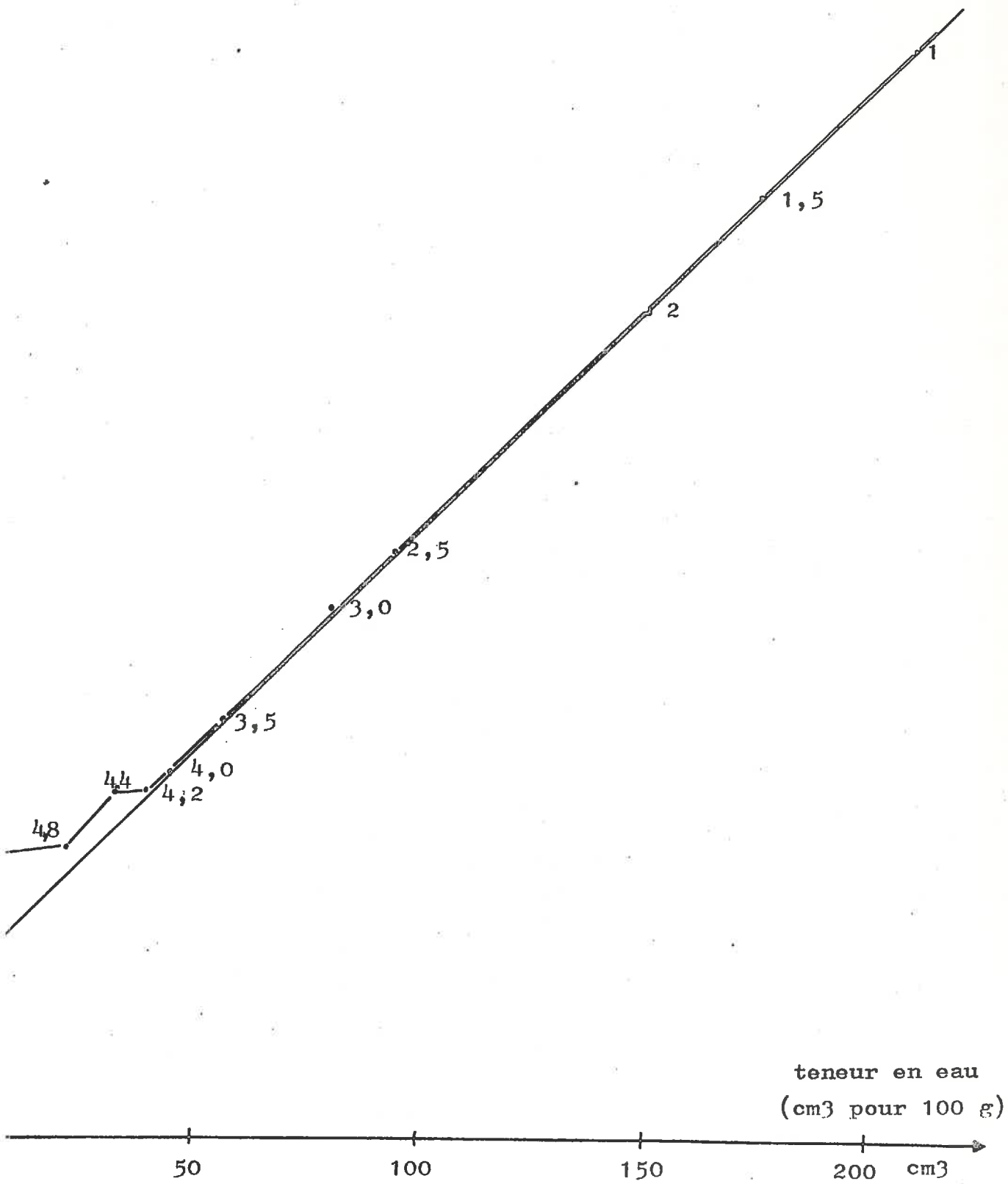


Fig. 22 - Courbe de retrait de la kaolinite

Le retrait de la kaolinite tel qu'il apparaît du point de vue de la relation volume - teneur en eau semble donc correspondre à un phénomène simple. Dans un premier stade, le départ d'eau est accompagné d'une diminution identique du volume apparent. Le matériau restant saturé, ceci implique nécessairement un changement des caractéristiques du système poreux. On peut d'ailleurs imaginer une sorte de resserrement par rapprochement des unités morphologiques qui occupent un volume de plus en plus restreint. Ce type d'évolution se produit jusqu'à 38 % d'eau ; après une phase transitoire qui va jusqu'à 20 % d'eau, les unités morphologiques arrivent enfin au contact ; on obtient alors une limite de retrait correspondant à une porosité de 33 %.

b) Relation contrainte - teneur en eau (figure 23)

Nous avons appliqué à nos échantillons une contrainte  $\Psi$  (g/cm<sup>2</sup>) ; cependant pour faciliter la présentation des résultats, nous utiliserons la notation classique  $pF$ , telle qu'elle a été définie par SCHOFIELD, soit  $pF = \log \Psi$  g/cm<sup>2</sup>.

Comme nous le savons, pour une contrainte donnée et à l'équilibre, l'échantillon possède une certaine teneur en eau. Si nous appliquons à cet échantillon des contraintes croissantes, de l'eau va être expulsée ; or, entre deux états de contrainte, la quantité d'eau extraite peut être plus ou moins importante.

Notons d'abord qu'à  $pF_1$ , la quantité d'eau présente dans l'échantillon est de 202 %. En repérant ensuite (figure 23) les quantités d'eau extraites entre 2 points de la courbe volume - teneur en eau, nous constatons immédiatement que le volume de fluide extrait est élevé aux faibles énergies, qu'il devient rapidement peu important dès  $pF$  3,5 - 4,0 et pratiquement négligeable au-delà de  $pF$  5,4.

A côté de cette évolution générale, il y a lieu de signaler un accident principal sur la courbe ; celui-ci, qui se situe entre  $pF$  2 et 2,5, permet d'extraire en un coup une quantité d'eau de l'ordre de 50 %.

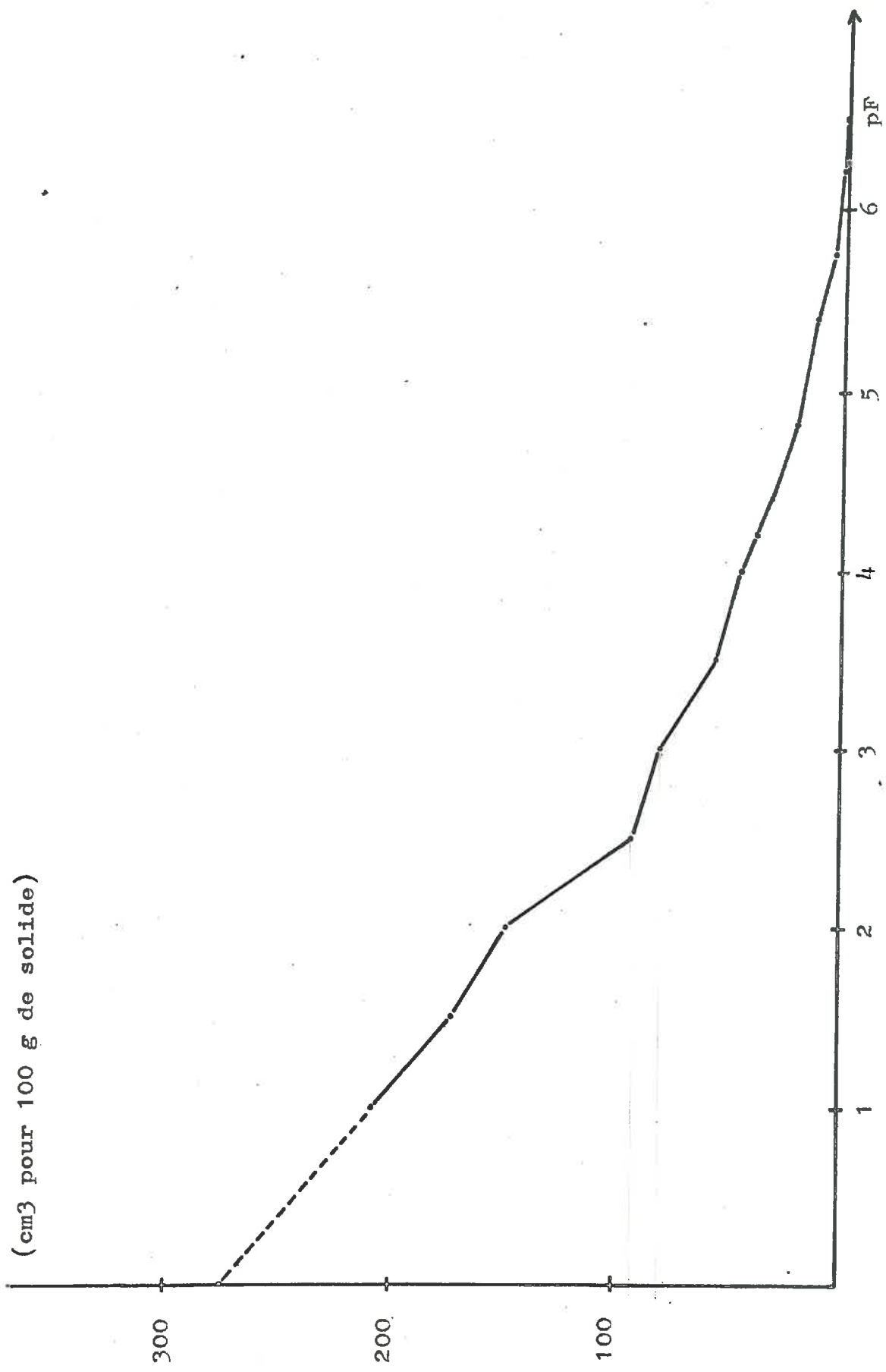


Fig. 23 - Relation contrainte-teneur en eau de la kaolinite



A ce propos, il convient d'attirer l'attention sur le fait que les résultats obtenus aux pF 2 et pF 2,5 sont parfaitement reproductibles (écart  $\leq 2 \%$ ) et ne peuvent donc être imputés à des erreurs de manipulations. Ainsi, il suffit d'un léger accroissement du potentiel  $\varphi$  à ce moment là, pour provoquer un départ d'eau important. Cela signifie qu'une grande partie de l'eau du matériau est liée au corps poreux par une faible énergie.

Il convient ensuite de remarquer que, dans la gamme des pF allant de pF 4 à pF 5, le départ de l'eau correspond à une liaison avec le corps poreux de nature différente de la précédente et qui se situe dans un domaine énergétique beaucoup plus élevé. Cette eau est attribuée comme participant directement à l'hydratation des cations saturant la capacité d'échange.

### c) Etude des paramètres du retrait

Les mesures ont été effectuées à l'aide d'un pied à coulisse sur un matériau dont le retrait latéral est facilité par la présence d'une mince couche de talc disposée à même la plaque poreuse de l'appareil de Richards et en même temps par le dépôt d'une mince couche de paraffine sur les anneaux.

Les résultats sont exprimés en considérant les rapports  $e/co$  et  $d/do$ ,  $e$  et  $d$  étant les paramètres du pâton à un équilibre donné ;  $e_0$  et  $d_0$  les paramètres initiaux.

La variation de  $e/co$  et  $d/do$  dépend évidemment de la teneur en eau initiale. Compte tenu de celle-ci, (300 %), le retrait de la kaolinite doit être important.

En examinant les données chiffrées relatives à  $d/do$  (cf tableau IX), nous pouvons remarquer qu'au cours des différents stades de l'expérience, le retrait latéral se produit pratiquement avant qu'on atteigne pF 1. Au-delà de cette contrainte,  $d/do$  varie très peu ; dans ces conditions, la diminution du volume n'affecte que l'épaisseur de l'échantillon (cf  $e/co$ ).

Tableau IX - Paramètres du volume de la kaolinite

F	Teneur en eau %	$e/e_0$	$d/d_0$	$e/e_0 / d/d_0$	Observations
	208	0,85	0,94	0,90	
,5	174	0,75	0,93	0,81	
	149	0,67	0,93	0,73	
,5	93	0,47	0,90	0,52	
	80	0,43	0,89	0,48	
,5	55	0,36	0,80	0,45	← transport du pâton de la plaque poreuse à la membrane
	44	0,32	0,80	0,40	
2	39	0,29	0,83	0,35	
,4	31	0,27	0,82	0,33	
,8	20	0,28	0,80	0,37	
,4	6	0,22	0,76	0,29	
75	5	0,23	0,80	0,29	
20	0,3	0,21	0,76	0,27	

De même, si nous étudions la variation du rapport  $A = e/co/d/do$  en fonction de la teneur en eau (cf figure 24), il apparaît une certaine évolution de l'anisotropie du retrait affectant le gâteau d'argile en fonction de la teneur en eau.

Nous constatons en effet que jusqu'à  $pF$  1,  $A$  varie peu par rapport à la quantité d'eau extraite. En revanche pour des contraintes supérieures ( $pF > 1$ ), l'évolution du rapport est constante et se fait régulièrement en fonction de la teneur en eau.

Ainsi, nous pouvons penser que le retrait se produit de deux manières différentes : l'une lorsque les teneurs en eau sont situées entre 300 et 208 % d'eau ; l'autre en deça de 208 %. En fait, il semble bien que l'homogénéisation préalable à la confection des pâtons conduise à une certaine isotropie du retrait et que, de ce fait, un réarrangement du matériau se produise spontanément entre 300 et 208 % d'eau. En revanche, dans la seconde partie de la courbe, il semble que ce soit le seul mécanisme de rapprochement des particules qui provoque le retrait du matériau jusqu'à des teneurs en eau nulles.

Ceci étant, notons qu'entre  $pF$  2 et 2,5, l'indice  $A$  décroît fortement et qu'il passe ainsi de 0,73 à 0,52. Nous confirmons donc les résultats précédents relatifs à la sensibilité particulière du matériau dans ce domaine de contrainte.

### 3° Etude de l'organisation interne à l'aide des rayons X

L'étude de l'orientation par l'intermédiaire de la diffraction des rayons X peut être réalisée sur une pâte argileuse, dès que celle-ci acquiert une cohésion suffisante pour être découpée avec un fil coupant de faible section (2/100ème de mm). Une tranche de 0,5 à 1 mm est prélevée avec un angle de coupe mesuré par rapport au plan de base de l'échantillon, qui est de  $\frac{\pi}{2} - 6,5^\circ = 83,5^\circ$  dans le cas de la kaolinite. L'échantillon étant fixe, on soumet celui-ci au faisceau de rayons X. Quand les particules de l'échantillon possèdent une certaine orientation, les diagrammes de rayons X obtenus comportent deux demi-anneaux hétérogènes. La présente

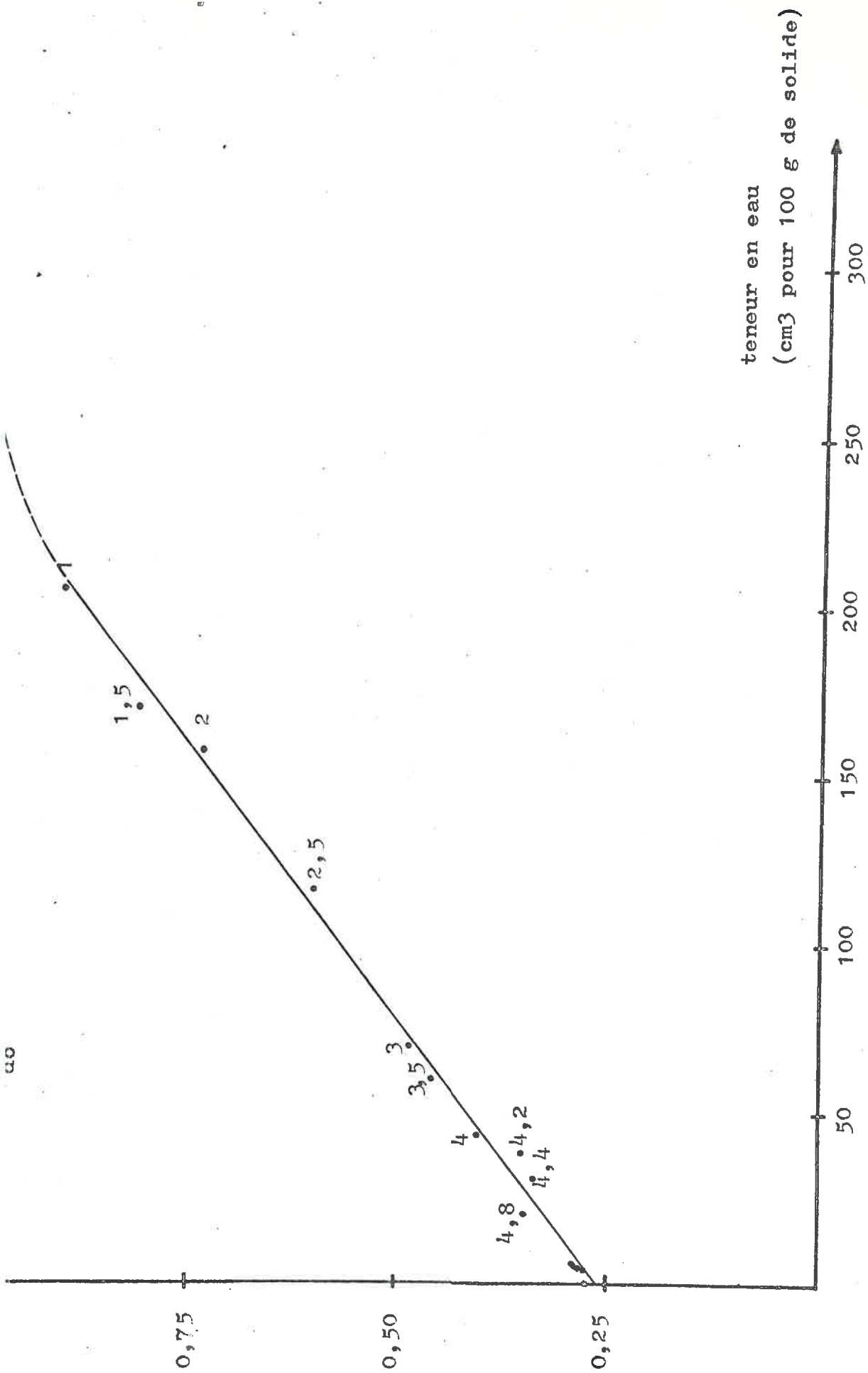


Fig. 24 - Anisotropie du retrait subi par les pâtons de kaolinite en fonction de la teneur en eau

méthode doit nous aider à préciser l'orientation globale des particules, telle qu'elle existait dans le matériau en place ; c'est l'indice  $R = \frac{I_{\text{maximum}}}{I_{\text{minimum}}}$  (rapport des intensités maximum et minimum) qui permet de caractériser cette orientation.

L'application de cette méthode aux échantillons de kaolinite a posé quelques problèmes ; en effet, aux teneurs en eau élevées [ $< 150\%$  ;  $pF < 2,0$ ], il ne nous a pas été possible de réaliser un prélèvement correct du spécimen à étudier. Ceci provient du fait que l'échantillon n'acquiert pratiquement pas de cohésion dans le domaine considéré. En conséquence, la première mesure sur l'échantillon en place n'a pu être réalisée qu'à partir de 149 % d'eau.

Toutefois, il convient de signaler qu'une mesure de l'orientation a été effectuée sur un échantillon de pâte argileuse prélevé avec une spatule dans le culot même de la centrifugation, c'est à dire au moment de la préparation de l'argile-Ca et avant toute homogénéisation. Or, les résultats obtenus ont montré qu'il n'existe pas sur les diagrammes D.S. de raies parfaitement homogènes. Dans ces conditions, même à ce stade, une certaine orientation des cristallites semble se manifester au sein du matériau.

Après homogénéisation et confection d'un pâton, nous avons pu réaliser le premier spectre à partir de  $pF 2$  (figure 25 a). Celui-ci révèle qu'à ce  $pF$ , l'orientation est déjà importante, puisque  $R = 6,1$  ; ainsi, ce résultat montre que l'effet de l'homogénéisation est déjà annulé et que la diminution du volume se produit en même temps que se manifeste une certaine orientation des cristallites.

Si maintenant nous observons les courbes réalisées à des contraintes plus élevées, nous remarquons que l'orientation des particules croît et que celle-ci porte préférentiellement sur un domaine angulaire de plus en plus restreint. Ce domaine angulaire a été établi en repérant sur la partie ascendante de la courbe l'abscisse à mi-hauteur : l'orientation préférentielle affecte les particules diffractant dans le domaine angulaire considéré.

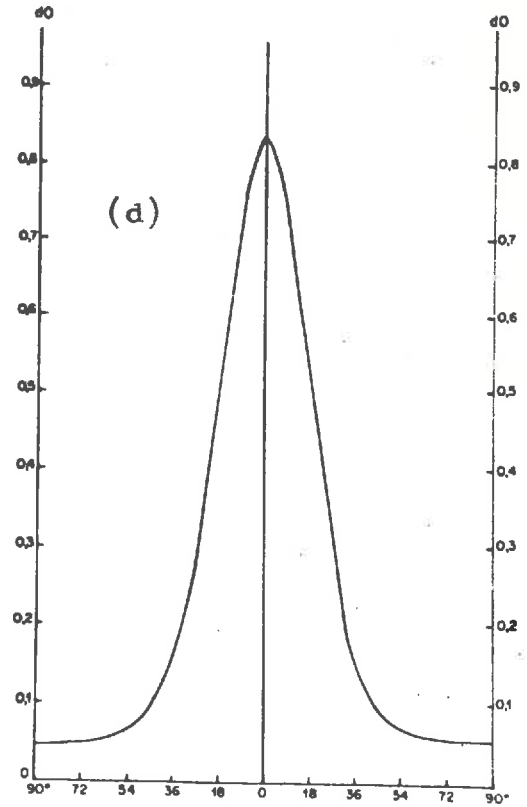
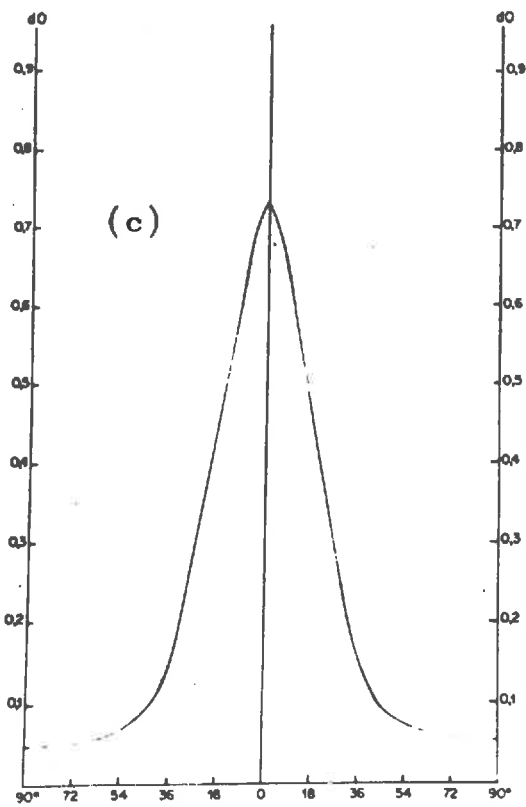
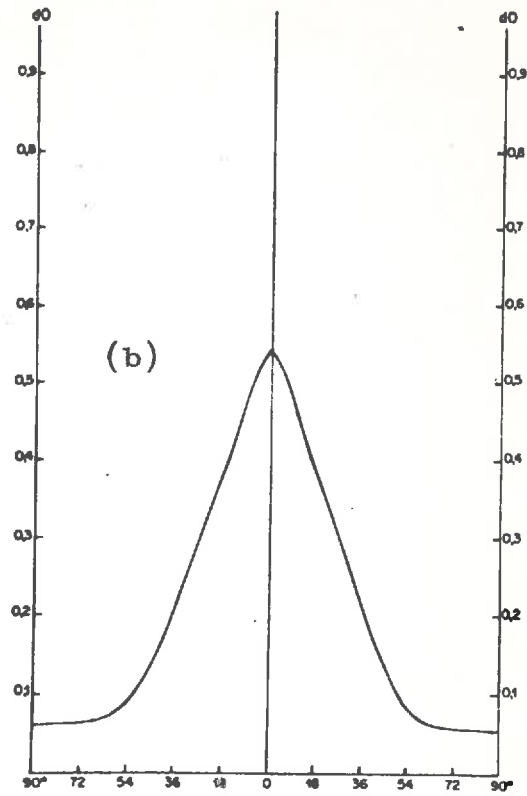
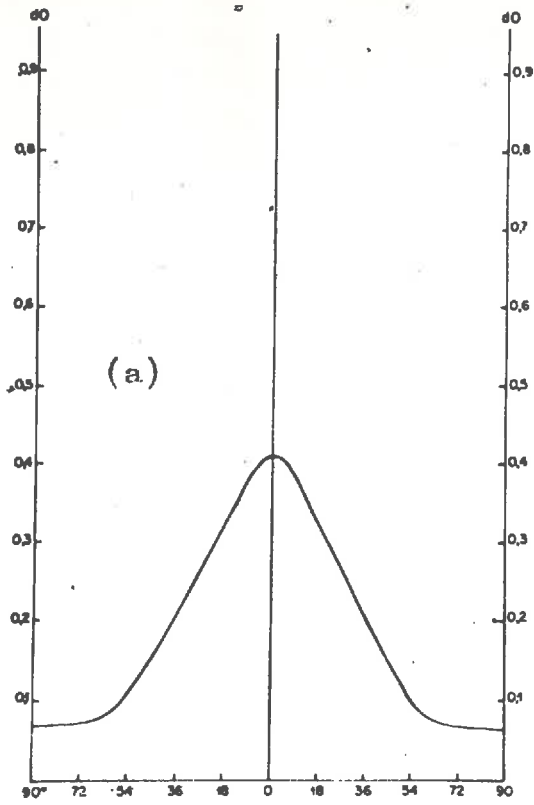


Fig. 25 - Spectres de rayons X réalisés sur la kaolinite :

(a)	$pF_2$ , 149 % d'eau ;	$R = 6,1$ ;	diffracti	$\pm 35^\circ$
(b)	$pF_3$ , 80 % " ;	$R = 9,0$ ;	" "	$\pm 27^\circ$
(c)	$pF_4$ , 44 % " ;	$R = 12,2$ ;	" "	$\pm 20^\circ$
(d)	$pF_{4,4}$ , 31 % " ;	$R = 20$ ;	" "	$\pm 19^\circ$

Ainsi, nous avons déduit d'après les courbes qu'à pF 2 le domaine angulaire est de  $\pm 35^\circ$  ; il passe ensuite à  $\pm 27^\circ$  à pF 3 et à  $\pm 20^\circ$  à pF 4, tandis qu'il atteint  $\pm 19^\circ$  à pF 4,4 (cf figure 25)

Ces résultats montrent donc qu'au cours des phases croissantes du retrait, les particules sont orientées dans un domaine angulaire de plus en plus restreint.

Mais nous remarquons aussi que l'indice d'orientation prend des valeurs de plus en plus élevées, puisque R passe de 6,1 à pF 2, à 9 à pF 3, puis à 12,2 à pF 4 et enfin à 20 à pF 4,4.

Au total, le nombre de particules qui diffractent dans une fourchette angulaire donnée, et qui est de plus en plus étroite, augmente progressivement.

Ces résultats sont tout à fait en accord avec les mesures des paramètres du volume. Le retrait anisotrope de la kaolinite procède de l'orientation des particules. L'orientation continue à progresser jusqu'à ce qu'un contact solide-solide s'établisse et, dans ce cas, le nombre de particules diffractant hors du domaine angulaire précité devient de plus en plus faible.

Comme nous le voyons, ces résultats permettent déjà d'envisager un certain nombre d'hypothèses relatives à l'organisation de la kaolinite au cours du retrait. Toutefois, avant d'en faire état, passons en revue les quelques informations complémentaires qui nous ont été apportées grâce à l'utilisation des méthodes de visualisation directe.

#### 4° Données sur l'observation directe de l'organisation interne (\*)

La première méthode (loupe binoculaire) n'a pu être utilisée que sur des échantillons ayant subi toutes les phases du retrait, tandis que la seconde (microscope électronique à balayage) n'a concerné que des échantillons ayant ensuite été soumis à un vide poussé.

(\*) Les photos au microscope électronique à balayage ont été prises par M. BERT Faculté des Sciences de Dijon sur un microscope CAMBRIDGE STEREOSCAN ..



L'étude microscopique d'un échantillon sur la tranche (photo 3) ne révèle aucune fissuration décelable à la loupe bino-  
culaire. L'échantillon présente l'aspect d'un bloc compact sans  
fissure ; la cassure pratiquée pour l'observation est nette et  
franche.

Si maintenant nous utilisons le microscope électronique  
à balayage pour une étude à un grossissement 220 X (photo 4), la  
tranche du gâteau présente un aspect lité ; on devine déjà les  
particules qui participent à l'organisation du système poreux.  
Nous verrons mieux l'organisation du matériau dans la photo 5  
(G x 2000). Celle-ci fait apparaître des particules orientées et  
superposées les unes aux autres. Notons qu'un certain nombre d'am-  
de cristallites ont été arrachés lors de la fracturation.

L'étude de l'organisation interne de la kaolinite au nive-  
des unités morphologiques a été réalisée dans de bonnes condition  
en dirigeant le faisceau d'électrons perpendiculairement au plan  
d'orientation principal. La photo 6 montre qu'à ce stade de  
dessiccation, les unités morphologiques qui participent à l'organ-  
sation sont généralement des monocristallites ou parfois des asse-  
blages de quelques cristallites seulement (3 ou 4 au maximum). Dan-  
ce cas, un gros cristallite sert de surface de placage à plusieurs  
autres éléments.

L'empilement des différents éléments texturaux ressemble  
à un château de cartes effondré, chaque carte possédant une forme  
hexagonale assez régulière. Le diamètre moyen des cristallites es-  
compris entre 0,2 et 0,3  $\mu$ , l'épaisseur est évaluée à 200  $\text{Å}$  ; le  
rapport épaisseur/diamètre est environ de 1 à 10 à 1 à 20. La  
granulométrie du matériau est donc très resserrée et comme la  
taille des cristallites est fine, ceux-ci ressemblent plus à des  
briques présentant une certaine épaisseur qu'à des cartes à jouer

Ces différentes observations conduisent à formuler un  
certain nombre d'éléments relatifs au système poreux de la kaolin  
à la limite de retrait. Chaque cristallite intervient pratiquemen-  
en tant qu'individu pour participer à l'organisation du matériau.

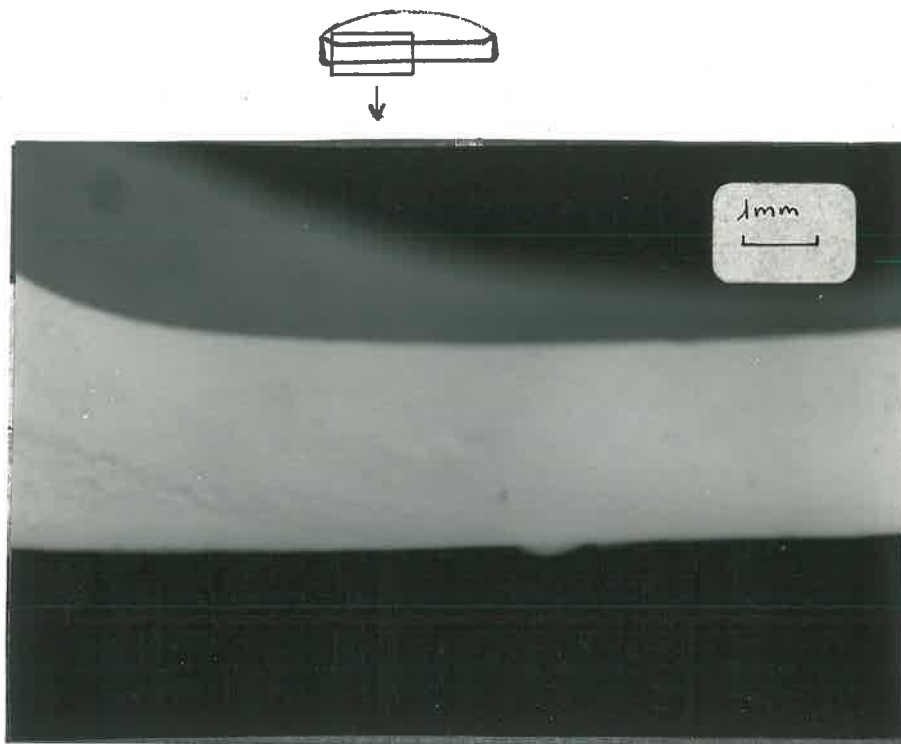


Photo 3 - Echantillon de kaolinite ; observation de la tranche du p $\hat{a}$ ton mettant en  $\acute{e}$ vidence l'absence de porosité fissurale. Loupe binoculaire x 10.

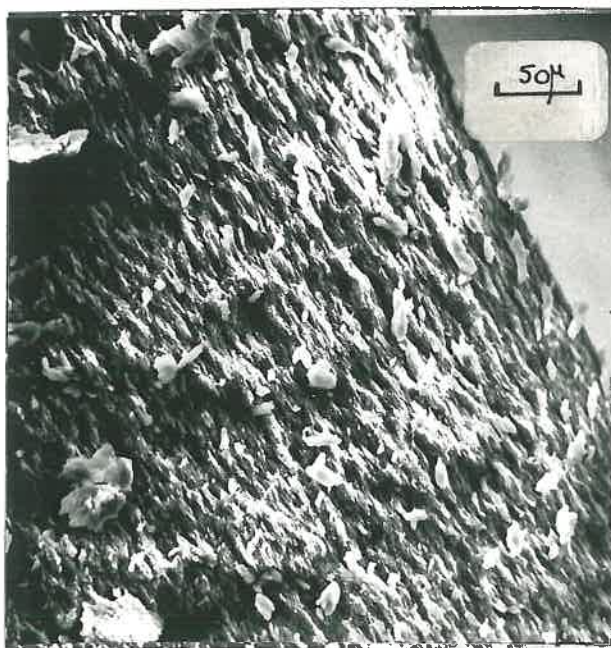


Photo 4 - Echantillon de kaolinite. Observation de la tranche du p $\hat{a}$ ton - MEB x 220.

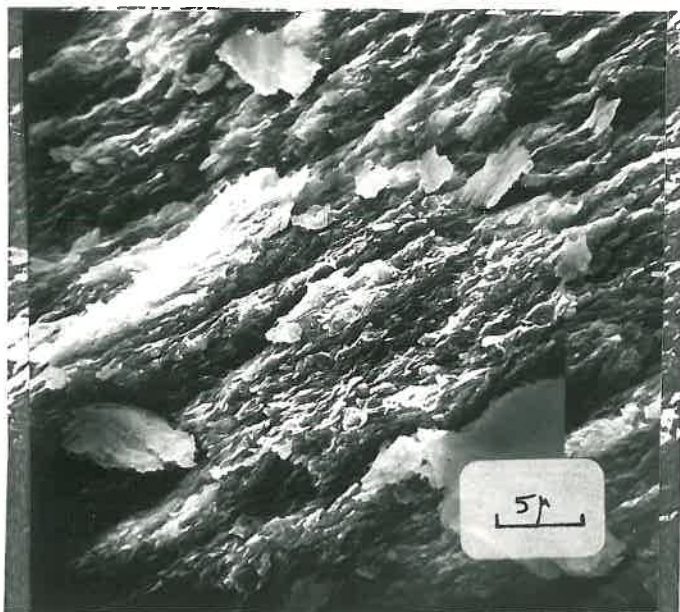


Photo 5 - Echantillon de kaolinite ; observation de la tranche du p $\hat{a}$ ton (~~sur un plan parall $\grave{e}$ le au plan de r $\acute{e}$ f $\acute{e}$ rence~~) ; vue g $\acute{e}$ n $\acute{e}$ rale de l'assemblage des cristallites.  
- MEB x 2200 -

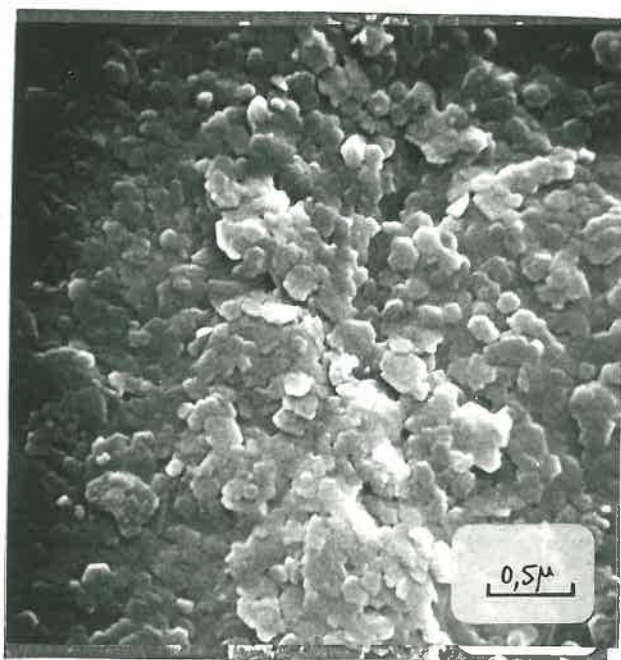


Photo 6 - Echantillon de kaolinite ; faisceau d' $\acute{e}$ lectrons perpendiculai au plan de r $\acute{e}$ f $\acute{e}$ rence : d $\acute{e}$ tails sur la forme, la taille et l'assemblage des cristallites - MEB x 22000 -

On peut penser d'ailleurs qu'il en est de même pour tous les stades du retrait, car on imagine difficilement qu'une désagrégation puisse se produire, lorsque la teneur en eau du matériau diminue.

Entre les cristaux planaires existe une porosité texturale qui doit être élevée du fait que les particules ne sont pas déformables et qu'elles ne s'emboîtent pas parfaitement les unes dans les autres. D'autre part, le rapport épaisseur/diamètre est élevé.

Enfin, notons que dans ces conditions, les surfaces en contact sont restreintes ; ceci aura nécessairement une grande influence quant aux propriétés mécaniques du matériau.

#### 5° Description de l'évolution de l'organisation du matériau au cours du retrait

##### a) Etat d'organisation du matériau consécutif à la préparation des échantillons

La préparation du matériau en vue de l'étude du retrait avait pour but en quelque sorte à supprimer toute l'histoire antérieure du matériau. Par "histoire", nous entendons ici toute action de phénomènes de nature physique qui modifient l'organisation du matériau, mais qui, en aucun cas, n'influent sur la constitution chimique du feuillet lui-même.

Cela étant, la première phase dans la préparation du matériau est celle de la dispersion à la sonde.

Les mesures que nous avons effectuées sur l'argile après dispersion montrent que 95 % des particules dispersées sont inférieures au micron. L'opération de dispersion aboutit donc à séparer la majeure partie des cristallites.

Après cette opération, nous avons ramené le pH de la suspension à 6,5 et nous avons ajouté immédiatement une solution de  $\text{CaCl}_2$  nécessaire pour saturer la capacité d'échange. Pour tous les types d'argiles, cette opération provoque une floculation. Signalons toutefois que dans la plupart des cas, il suffit de quelques minutes après l'adjonction d'électrolyte pour obtenir une très



bonne séparation entre le flocculat et le liquide surnageant ; pour la kaolinite, en revanche, le phénomène apparaît toujours beaucoup moins rapidement en sorte qu'il s'agit plus vraisemblablement d'une simple sédimentation de particules dispersées.

Dans le cas de l'argile kaolinique retenue ici, nous avons eu un comportement analogue à celui que nous venons de décrire, puisqu'il a fallu 16 heures avant que le liquide surnageant soit grosso modo débarassé de l'argile dispersée.

Ce comportement particulier à la kaolinite Ca a bien été mis en évidence par SCHOFIELD et SAMSON (1954), compte tenu de ce qui précède, il était donc intéressant de tester que le mode de préparation de la suspension n'influence pas l'état d'organisation du matériau au moment du remplissage des anneaux. Il était notamment important de vérifier par la méthode d'étude de l'orientation aux rayons X, si à ce moment là, existent une certaine orientation. Comme nous l'avons vu, la réponse est affirmative et confirme d'une certaine manière les conceptions de SCHOFIELD.

Au demeurant, il convient d'être très prudent, car l'orientation d'une argile peut dépendre en réalité de plusieurs facteurs et notamment :

- de conditions physico-chimiques, qui empêchent l'association bord-face
- de données stériques découlant de la teneur en eau ; ainsi à 300 % d'eau par exemple, il est possible d'imaginer que la teneur en eau soit insuffisante pour maintenir une association type bord-face. En fait, les travaux relatifs à l'orientation de la kaolinite en présence d'oxydes de fer (CHAUVEL et TESSIER (1975) réalisés sur cette même kaolinite révèlent que celle-ci peut conserver une association bord-face mettant en oeuvre des monocristaux jusqu'à une porosité égale à 53 %. Nous sommes donc conduits à interpréter l'orientation de la kaolinite comme n'étant pas d'origine stérique, mais plutôt de nature physico-chimique. Les travaux de SCHOFIELD et SAMSON, qui montrent que dans certaines conditions l'association des cristaux bord-face n'existe pas, sont ainsi confirmés.

.../...

## b) Evolution de l'organisation

Après la préparation de l'argile calcique, nous avons réalisé une homogénéisation du matériau de manière à faciliter les comparaisons entre les différentes argiles. Dans la kaolinite, nous avons provoqué ainsi un état d'isotropie tout à fait artificiel dont il est difficile de situer le niveau de perfection. Puis, nous avons rempli les anneaux de Richards et nous avons soumis l'argile à des contraintes hydriques croissantes.

La première phase du retrait se situe entre le matériau de départ et pF 1. Dans ce domaine, le retrait est de type isotrope et il ne fait aucun doute que celui-ci consiste en une réorientation des cristallites et, en quelque sorte, en un retour à l'état initial de la pâte argileuse orientée.

Ceci est d'ailleurs confirmé par la seconde phase, qui se produit entre pF 1 et pF 4,4. Dans cette gamme de contrainte, le retrait affecte essentiellement l'épaisseur du gâteau d'argile, les études de l'organisation interne par les rayons X montrant que le retrait obtenu va de pair avec l'orientation des cristallites. Quand on passe d'une certaine teneur en eau à une autre plus faible, la fourchette angulaire dans laquelle les particules diffractent préférentiellement se resserre, tandis que le nombre des particules qui diffractent dans cette fourchette est de plus en plus élevé.

Nous avons schématisé l'organisation de la kaolinite qui correspondrait à une contrainte faible et celle qui existe à la limite de retrait (figure 26).

Dans le premier cas (figure 26 a), la porosité intercristallites est forte, l'orientation se situant dans un domaine angulaire important. Dans le deuxième cas (figure 26 b) c'est à dire à la limite de retrait, le domaine dans lequel les particules sont orientées est plus restreint, mais la forme des cristallites, leur épaisseur et aussi leur rigidité font que l'espace poral reste au demeurant assez important. Il faut ajouter qu'étant donné la dimension des cristallites et leur épaisseur, la taille des pores se situe dans une fourchette réduite, car la distance entre deux

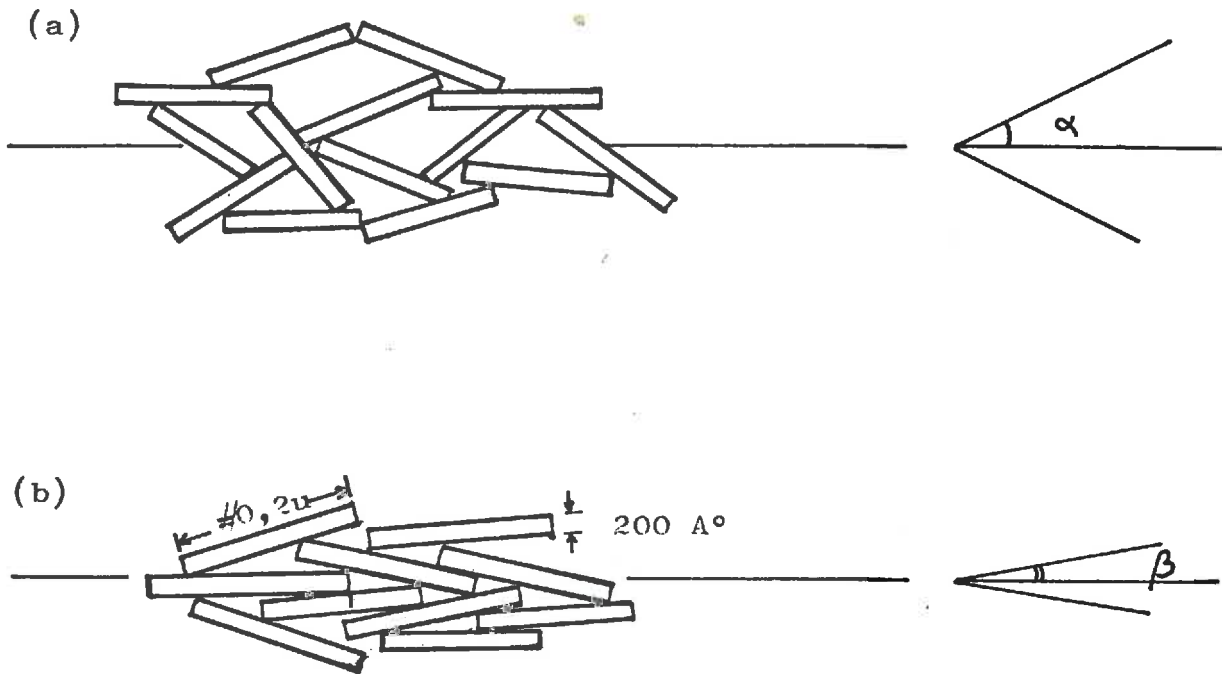


Fig. 26 - Représentation schématique de l'orientation des cristallites de kaolinite

- a) Kaolinite à un fort état d'hydratation
- b) même échantillon, mais à la limite de retrait



crystallites est au plus égale à l'épaisseur du cristallite coïncé entre deux autres (vue sur la tranche). En revanche, dans la direction orthogonale à la précédente, la longueur du pore est voisine du diamètre des cristallites. L'espace poral de la kaolinite ne semble donc pas du tout devoir ressembler à un système de tubes capillaires cylindriques.

A ce sujet, en utilisant la loi de LAPLACE, nous pouvons définir le rayon du pore équivalent à une contrainte donnée. En prenant  $\varphi = \frac{0,15}{r}$ , on trouve :

- . à pF 2,  $r = 15 \mu$
- . à pF 3,  $r = 1,5 \mu$
- . à pF 4,  $r = 0,15 \mu$

Nous voyons donc qu'entre pF 2 et pF 3, là où se produit le départ d'eau maximum, la taille du pore équivalent est incontestablement supérieure à la réalité. En effet, une association de cristallites se comportant comme des individus et mesurant  $0,2 \mu$  de diamètre ne peuvent délimiter des cavités, dont le diamètre est très supérieur à l'une des faces. Il y a donc un décalage, pour ce domaine de contrainte, entre la notion de pore équivalent et la réalité du système poreux.

Signalons enfin, que dans le système poreux de la kaolinite caractéristique de la limite de retrait, les surfaces en contact sont très peu étendues ; ceci vient du fait que les particules sont rigides et qu'elles ont une granulométrie de type homodisperse. Une telle situation aura certainement une grande importance quant aux propriétés mécaniques de l'argile. On peut d'ailleurs s'attendre à ce que la cohésion de cette argile soit relativement faible.

\*  
\* \*

## B - MONTMORILLONITE

### 1° Rappels sur les propriétés générales du matériau

La montmorillonite est un minéral 2/1 dioctaédrique, dont le déficit de charge interne aux feuillets est provoqué notamment par l'existence de substitutions Al-Mg en couche octaédrique. Ce déficit, évalué en général à 0,4 charge par demi-maille cristalline, est compensé par la présence de cations hydratables, localisés entre les feuillets. Comme nous avons rendu l'argile calcique, l'épaisseur apparente des feuillets dépendra de l'état d'hydratation de la montmorillonite.

La morphologie des unités morphologiques observées à l'aide du microscope électronique révèle que celles-ci, sous vide et pour des teneurs en eau nulles, sont constituées par des assemblages à morphologie rubannée.

La réactivité de ce phyllosilicate est particulièrement importante et on définit deux types de surfaces : la surface externe qui serait en quelque sorte la surface interparticules primaires et la surface interne qui correspond à la surface développée entre les feuillets.

Celles-ci sont respectivement évaluées à 58 et 766 m<sup>2</sup>/g. La capacité d'échange en cations est de 82 milliéquivalents pour 100 g d'argile déshydratée.

### 2° Mesures globales caractérisant le retrait (cf tableau I)

Les mesures effectuées sur la montmorillonite ont été faciles à réaliser, le matériau possédant, dès que la teneur en eau descend à 500 %, une cohésion tout à fait suffisante pour être en mesure de procéder aux diverses déterminations. La seule véritable difficulté a été de pouvoir travailler rapidement et à l'abri de l'air, afin d'éviter toute déshydratation de l'argile.

Les résultats ont été exprimés, comme à l'habitude, pour 100 g d'argile déshydratée. Mais cette manière d'opérer a posé ici quelques problèmes, car il a fallu déterminer au préalable jusqu'à

.../...

quelle température l'eau d'hydratation des cations continuait à s'échapper. A cet effet, nous nous sommes basés à la fois sur la formule structurale et la perte en eau enregistrée à 1000°C. La quantité d'OH évaluée à partir de la formule structurale ayant été soustraite de la perte en eau à 1000°C, nous avons obtenu une température limite qui se situe à 300°C ; c'est cette dernière température que nous avons prise comme référence pondérale. Ceci présente d'ailleurs l'avantage de pouvoir travailler sur la densité réelle, calculée à partir de la formule structurale et évaluée à 2,70.

Nous présentons dans le tableau X les divers résultats correspondant à ces mesures globales ; nous nous reporterons à ces données pour commenter les courbes et schémas rassemblés dans les paragraphes suivants.

a) Relation volume - teneur en eau (cf figure 27)

Au début de la courbe, l'échantillon possède une teneur en eau considérable, puisque le volume de liquide est 20 fois supérieur au volume de solide. Dans ces conditions, le retrait de la montmorillonite sera obligatoirement de grande amplitude. Ceci laisse déjà prévoir certains types de comportement que nous envisagerons ultérieurement pour cette argile.

En observant cette courbe, le second fait qui apparaît, c'est que le retrait du matériau est quasi continu jusqu'à des teneurs en eau très faibles. Ainsi, aux petits accidents près constatés sur la courbe et qui sont de l'ordre des erreurs de mesure, la montmorillonite apparaît comme un matériau qui ne présente pas de limite de retrait. Tout au plus, peut-on observer sur la courbe un léger palier qui se situe pour une teneur en eau inférieure à 20 %, teneur à partir de laquelle une fraction non négligeable de la porosité est occupée par de l'air.

Nous devinons donc déjà une autre caractéristique importante de la montmorillonite : à quelle que teneur en eau que l'on se trouve, le minéral est pratiquement capable d'évoluer, c'est à dire, soit de gonfler, soit de se retracter, avec tout ce que cela comporte comme conséquences du point de vue des propriétés physiques et mécaniques.

.../...

Tableau X - Mesures globales caractérisant le retrait de la montmorillonite. Les résultats ont été établis pour une densité réelle de 2,70 (37 cm<sup>3</sup> pour 100 g de solide)

Échantillon	Volume total pour 100 g de solide	Volume d'eau pour 100 g de solide	Volume d'air pour 100 g de solide	Porosité totale en pour cent	Porosité occupée par l'air (% du volume total)	Quantité d'eau extraite entre deux équilibres successifs
11e	812,9	754,1	21,8	95,40	2,7	-
	553,3	498,3	18,0	93,3	3,2	-
25	545,2	490,3	17,9	93,2	3,3	8,0
50	504,4	448,3	19,1	92,6	3,8	42,0
75	470,6	415,3	18,3	92,1	3,9	33,0
	424,4	370,4	17,0	91,2	4,0	44,9
125	396,9	348,3	11,6	90,7	2,9	22,1
150	248,5	206,0	5,5	85,1	2,2	142,3
175	227,6	185,8	4,8	83,7	2,1	20,2
200	197,5	157,2	3,3	81,2	1,7	28,6
	137,5	99,4	1,5	73,2	1,1	57,8
	134,3	95,1	2,2	72,4	1,6	54,3
	129,2	89,1	3,1	71,3	2,4	6,0
	121,0	73,3	10,7	69,4	18,9	15,8
	79,3	41,6	0,7	53,3	0,9	31,7
	64,2	20,7	6,5	42,3	10,1	20,9
5	61,3	17,6	6,7	39,6	10,1	3,1
	56,1	4,3	14,8	34,0	26,4	13,3
	55,2	4,1	14,1	33,0	25,5	0,2

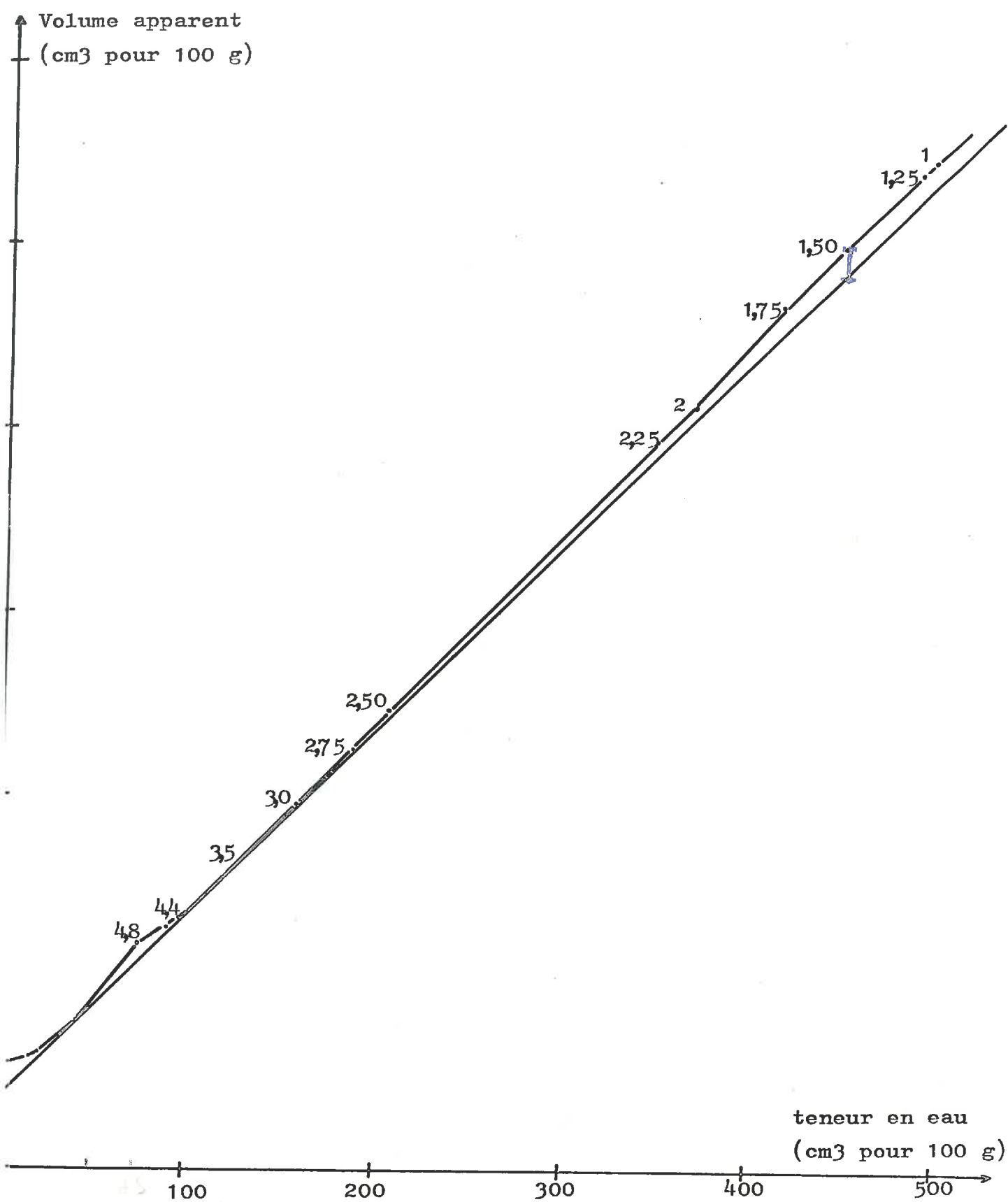


Fig. 27 - Courbe de retrait de la montmorillonite

b) Relation contrainte - teneur en eau (figure 28)

Au premier abord, la relation volume-teneur en eau paraît simple ; examinons cependant d'un peu plus près comment réagit cette argile à une contrainte donnée.

Au premier équilibre (pF 1), la teneur en eau est encore énorme, puisqu'elle est de 500 % ; elle n'a donc aucune commune mesure avec celle caractérisant les autres types d'argiles à ce pF. Remarquons à ce sujet que, pour une contrainte identique, le système poreux est nécessairement fort différent de celui des autres argiles, puisqu'il doit être capable d'emmagasiner une quantité d'eau importante.

Si nous soumettons le matériau à des contraintes de plus en plus fortes, nous observons d'abord qu'entre pF 1 et 1,25 le matériau libère d'abord une petite quantité d'eau, qui devient plus importante entre pF 1,25 et 2,25.

Mais, lorsque nous appliquons la contrainte 2,5, la quantité d'eau libérée par le matériau devient très grande puisque l'on passe d'un seul coup de 348 à 206 % d'eau ( $\Delta = 142$  %).

Ainsi, dans un premier domaine qui va jusqu'à pF 2,25, le système poreux de l'argile est moins affecté par la contrainte appliquée qu'entre 2,25 et 2,5. Dans ce domaine, la pression exercée sur le système poreux devient suffisante pour provoquer un départ d'eau de l'ordre de 150 % par rapport à la teneur en eau correspondant à l'équilibre précédent : ceci affecte alors obligatoirement et profondément l'organisation de l'argile.

Si nous étudions maintenant le comportement du matériau au-delà de pF 2,5, nous voyons que jusqu'à pF 3 la quantité d'eau libérée redevient plus faible : le corps poreux paraît encore relativement peu sensible à la contrainte qu'on lui applique. Il s'agit donc d'un comportement qui semble tout à fait analogue à celui observé en deçà de pF 2,25.

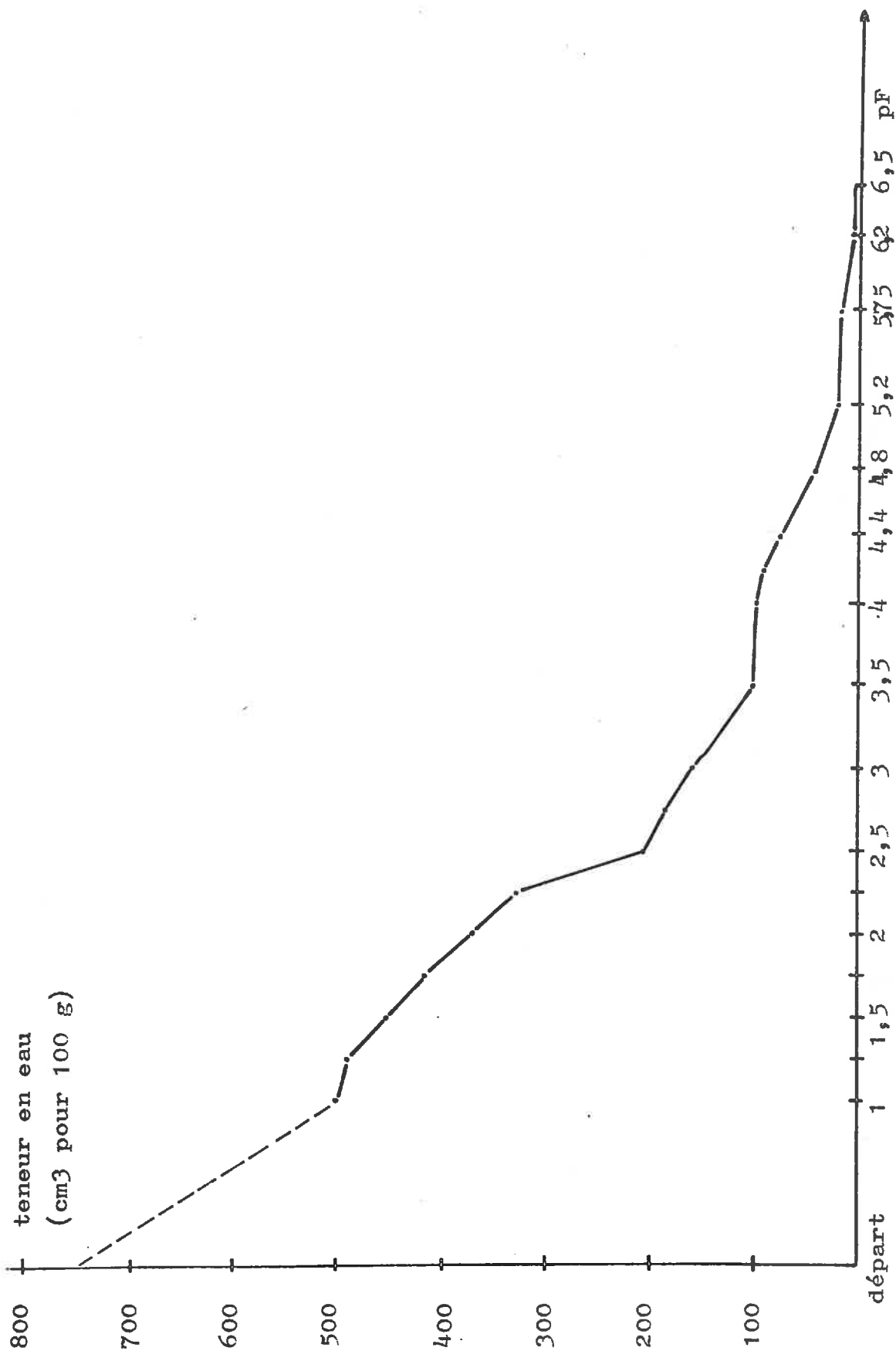


Fig. 28 - Relation contrainte-teneur en eau de la montmorillonite



En revanche, de pF 3 à pF 3,5, la contrainte appliquée provoque un départ d'eau un peu plus substantiel. Ainsi, nous retrouvons un comportement qui se rapproche de celui observé entre pF 1 et 2,25, à savoir, d'abord une relative insensibilité du matériau, puis un nouveau départ d'eau plus important. Notons toutefois que dans cette phase du retrait, le phénomène est beaucoup moins accentué.

Si nous poursuivons encore l'observation de la courbe teneur en eau-contrainte, nous constatons le même type de phénomène que celui décrit précédemment ; ainsi, entre pF 3,5 et 4,2 ; la teneur en eau diminue peu malgré un accroissement important de la contrainte ; en revanche, entre pF 4,2 et 5,2, la teneur en eau s'abaisse plus rapidement.

\*

Ces différentes observations relatives à la montmorillonite et qui concernent la relation contrainte-teneur en eau, montrent que dans ce type d'argile, l'eau est liée au matériau à l'intérieur de gammes d'énergie relativement restreintes, qui correspondent sans aucun doute, à des associations eau - système poreux caractéristiques de chaque état. Ainsi, pour provoquer le départ d'eau du matériau, il suffit d'appliquer une contrainte égale à pF 2,5 pour amener celui-ci à 200 % d'eau, ou à pF 3 pour arriver à 100 % d'eau et enfin à pF 4,8 pour qu'il ne reste plus que 40 % d'eau dans l'échantillon.

Chaque contrainte limite provoquant le départ d'une importante quantité d'eau, il est vraisemblable que le nouvel état d'équilibre correspond à chaque fois à un type d'association eau-argile bien déterminé. Mais, comme le système poreux reste quasi-saturé en eau tout le long de l'essai, cela signifie que chaque équilibre correspond à un nouveau type d'organisation.

Ces différentes méthodes que nous allons appliquer aux échantillons vont nous permettre maintenant de cerner de plus près l'organisation interne des échantillons correspondant à chacun de ces états.

.../...

c) Etude des paramètres du retrait (tableau XI)

Comme pour les autres matériaux argileux, nous allons comparer les dimensions de l'échantillon correspondant à un équilibre donné aux dimensions initiales du gâteau.

La montmorillonite étant fortement hydratée, l'ampleur du retrait va devenir si important que des phénomènes annexes, comme la déformation de l'échantillon, doivent faire leur apparition. A ce sujet, il convient donc d'examiner au préalable dans quels domaines, les mesures du volume vont pouvoir être réalisées, ceci afin que les résultats obtenus gardent toute leur signification. Nous n'aborderons pas ici les problèmes de forme et d'organisation interne qui seront exposés plus loin ; disons simplement que dans le domaine des teneurs en eau supérieures à 157 %, l'échantillon garde sa forme, alors qu'il se déforme considérablement entre pF et 3,5. L'étude des paramètres intervenant dans le retrait se limitera donc à l'étude des pâtons, dont la teneur en eau est supérieure à 157 % (cf figure 33).

Nous considérerons d'abord les paramètres  $e/e_0$  et  $d/d_0$  du gâteau. Comme pour les autres argiles, nous constatons que le retrait se fait globalement de manière isotrope.

Toutefois, pour replacer les données dans leur contexte, nous avons suivi aussi la variation de  $A = e/e_0/d/d_0$  en fonction de la teneur en eau (figure 29).

Dans une première phase, qui va de 750 % à 500 % d'eau, le retrait garde un certain caractère d'isotropie marqué : en effet, la courbe reste relativement proche de l'horizontale. Ce caractère isotrope se maintient d'ailleurs plus ou moins jusqu'à 370 % d'eau. C'est ultérieurement et tout à fait progressivement que de 370 à 157 % d'eau, le retrait devient anisotrope et affecte plus fortement l'épaisseur de l'échantillon.

Ces données permettent d'envisager différents mécanismes possibles concernant l'évolution de l'organisation : lors d'une première phase, il se produirait ainsi un simple rapprochement

.../...

Tableau XI - Paramètres du volume des pâtons de  
montmorillonite

pF	Teneur en eau en pour cent	$e/e_0$	$d/d_0$	$e_0/e_0/d/d_0$
1	498	0,85	0,88	0,97
1,5	448	0,76	0,87	0,86
2	370	0,65	0,87	0,74
2,5	206	0,48	0,86	0,56
3	157	0,31	0,76	0,41
3,5	99	0,25	0,73	0,34

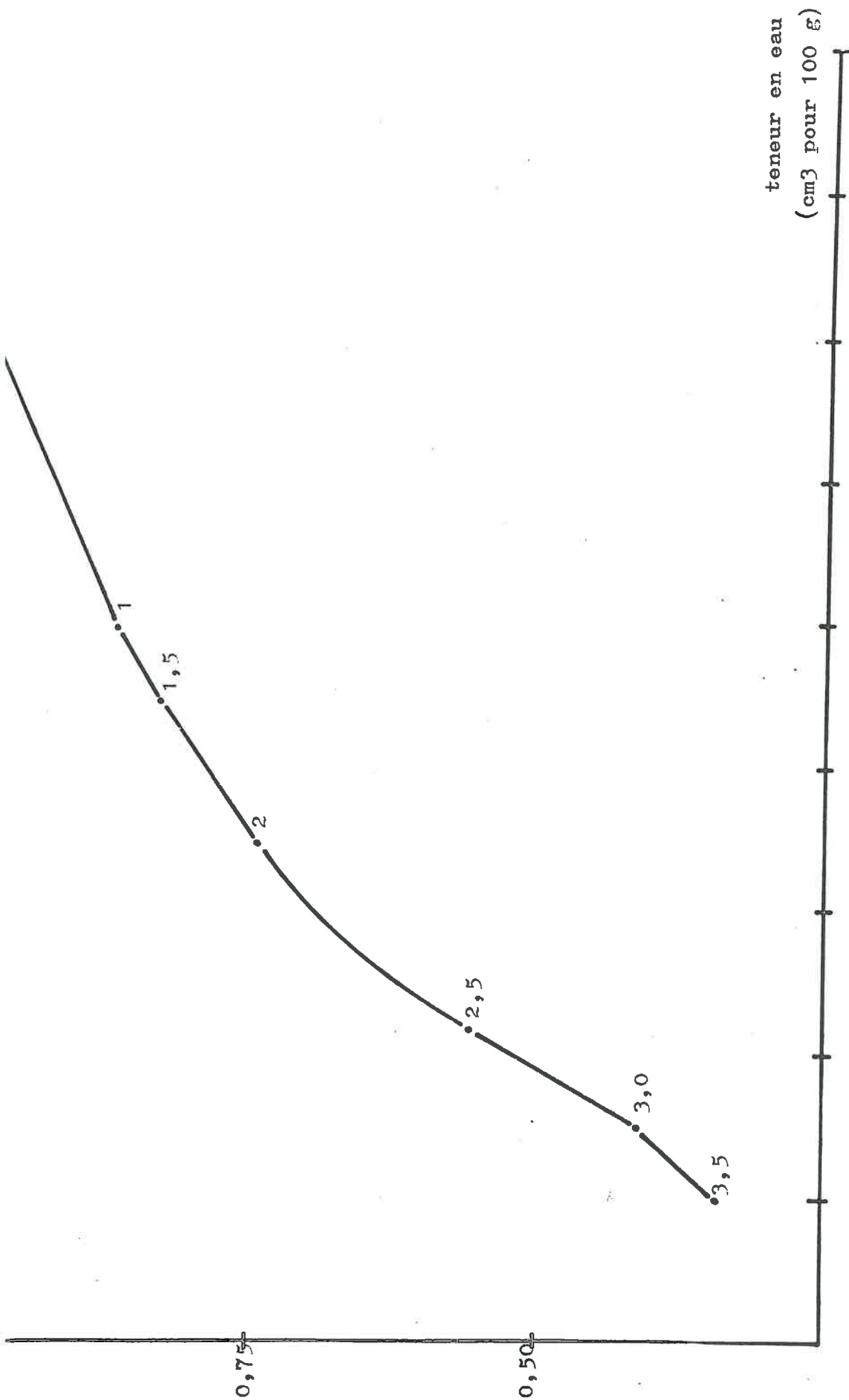


fig. 29 - Anisotropie du retrait de la montmorillonite en fonction de la teneur en eau

entre les unités morphologiques (retrait de caractère isotrope), alors que dans la seconde phase, c'est une modification de l'organisation liée à l'orientation de ces unités qui interviendrait.

Il faut noter à ce point de l'étude que ces données sont beaucoup moins précises que celles qui concernent la relation contrainte-teneur en eau et qui nous avaient conduit à distinguer diverses phases relatives à la sensibilité du matériau vis à vis de la contrainte  $\varphi$ . Tout ce que l'on peut dire actuellement, c'est que l'orientation devient le phénomène moteur de l'organisation au-delà de 370 % d'eau ; en revanche, nous ne sommes pas capables de différencier les domaines correspondant aux pF 2,25 à 2,5 d'une part et pF 3 à 3,5 d'autre part, à partir des mesures globales caractérisent le retrait.

### 3° Etude de l'organisation interne à l'aide des rayons X

Aux fortes teneurs en eau (500 %), les échantillons de montmorillonite présentent toujours une cohésion suffisante pour pouvoir être découpés selon le protocole décrit dans la première partie.

Rappelons que le spécimen soumis au rayonnement X est découpé ici perpendiculairement au plan de base de l'échantillon. Dans ces conditions, si une orientation des particules existe, l'intensité maximum relevée sur l'anneau correspond aux particules orientées à  $0^\circ$  par rapport au plan de base de l'échantillon ;  $\theta$  étant l'angle de Bragg caractéristique de la distance interréticulaire choisie. L'intensité minimum correspond aux plaquettes orientées à  $\frac{\pi}{2}$  par rapport au plan de référence. Or, comme nous le verrons,  $d(001)$  de la montmorillonite restant pratiquement constant, les comparaisons entre échantillons seront probablement facilitées. En outre, du fait que  $\theta \neq 2^\circ$ , un demi anneau balaie 98 % du domaine angulaire d'orientation de la montmorillonite.

Ceci étant, rappelons qu'à côté des mesures d'orientation, la méthode basée sur la diffraction des rayons X apporte des renseignements complémentaires et classiques, relatifs à l'équidistance apparente des feuillets. Ce second type de renseignement

.../...

est très important à considérer, si l'on veut étudier le rôle du gonflement "intracristallin" de la montmorillonite dans l'évolution du système.

#### a) Etude de l'orientation

Comme dans le cas des autres argiles, nous avons prélevé au départ un peu de pâte argileuse dans le culot de centrifugation et avant homogénéisation, afin de mettre en évidence éventuellement une orientation préférentielle.

Signalons d'abord qu'à cette teneur en eau, l'argile récupérée dans le tube de la centrifugeuse présente une certaine rigidité caractéristique d'un état de gel. En outre, les anneaux de diffraction restent parfaitement homogènes : il n'existe donc pas au départ d'orientation préférentielle.

Nous avons ensuite confectionné les pâtons d'argile afin de les soumettre à des contraintes croissantes.

A pF 1 et pour les valeurs du pF allant jusqu'à pF 2, les spectres de rayons X révèlent une orientation quasi nulle, puisque R passe de 1,30 à pF 1 à 1,50 à pF 2,0 (cf figure 30 a et b).

Dans toute la gamme d'énergie envisagée, ce type de spectre conduit à concevoir une sorte de resserrement entre les unités morphologiques qui s'effectuerait sans qu'on puisse noter une quelconque orientation.

Nous avons ensuite soumis l'argile à des contraintes supérieures à pF 2. A partir de pF 2,25, l'indice d'orientation devient plus élevé ( $R = 1,70$ ), mais surtout la courbe de distribution des intensités diffractées prend une allure un peu particulière. Ainsi il apparaît que, dans un domaine angulaire donné, les intensités diffractées sont plus élevées. A pF 2,25, le domaine angulaire est compris entre  $\pm 48^\circ$ . Ce phénomène se produit d'ailleurs aux pF 2, et 2,75, le domaine d'orientation préférentielle se manifestant respectivement dans la fourchette  $\pm 43^\circ$  et  $\pm 42^\circ$  environ (figures 30 d et 31 a). Pour ces deux dernières valeurs du pF, les courbes

.../...

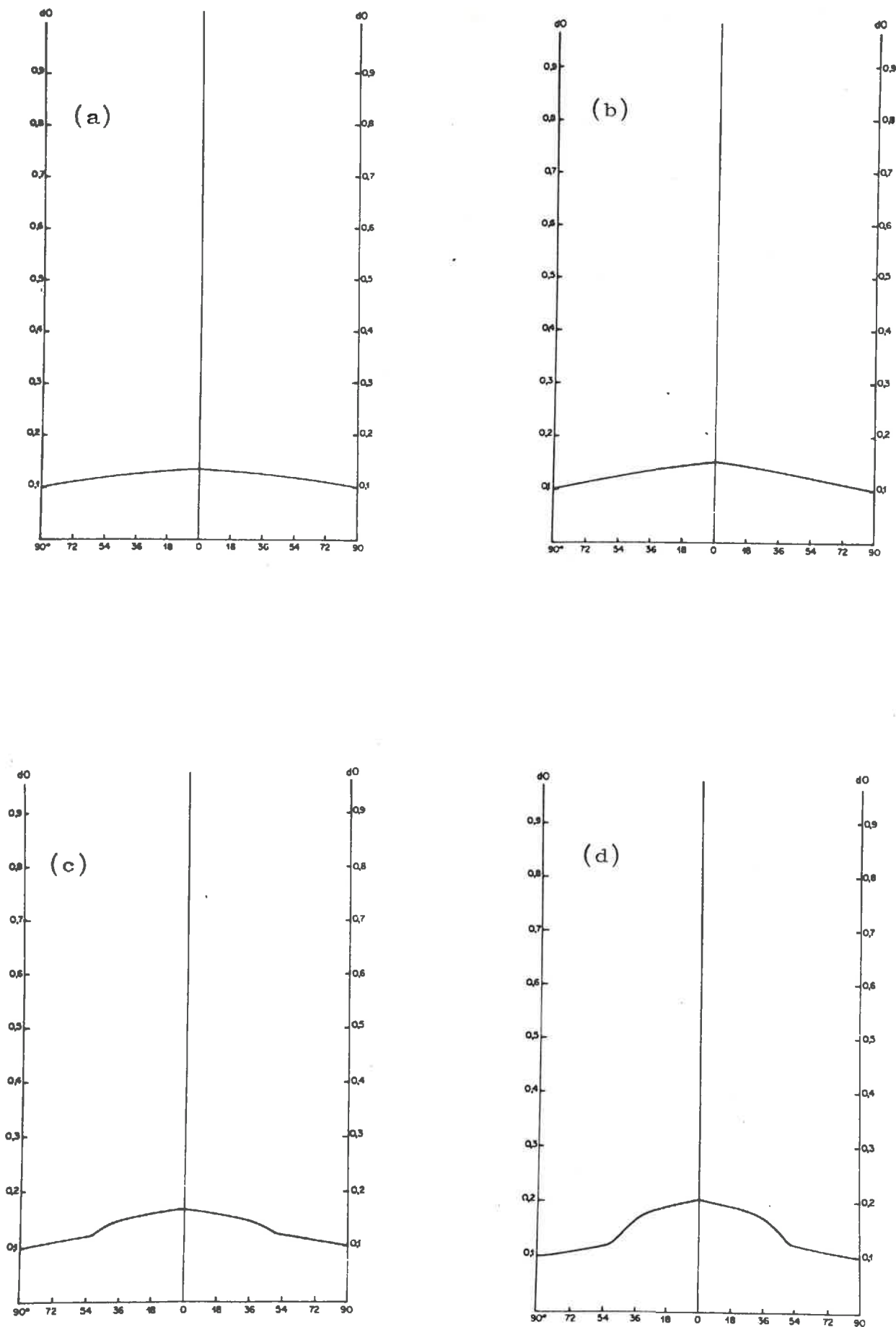


Fig. 30 - Spectres de rayons X réalisés sur la montmorillonite :

(a)  $pF_1$  ;  $R = 1,30$

(b)  $pF_2$  ;  $R = 1,50$

(c)  $pF_{2,25}$  ;  $R = 1,70$  ; diffraction préférentielle  $\pm 48^\circ$

(d)  $pF_{2,50}$  ;  $R = 2,05$  ; " " "  $\pm 43^\circ$



prennent l'allure de courbes de GAUSS tronquées ; aussi est-on amené à penser que les particules occupent toutes les orientations possibles au sein du domaine considéré. Nous pouvons noter en outre que de pF 2,25 à 2,75, le degré de liberté propre aux particules devient de plus en plus restreint au fur et à mesure que la teneur en eau décroît.

Examinons maintenant comment évoluent les spectres lorsque les contraintes deviennent supérieures ou égales à pF 3 (figure 31 b,c et d).

A pF 3, l'indice d'orientation continue à croître ( $R = 2,90$ ), mais en outre, la courbe acquiert une nouvelle forme qui tend à se rapprocher d'une courbe de distribution normale de GAUSS. Ceci est d'ailleurs confirmé par les valeurs du pF allant de 3 à 3,5 : l'orientation est alors maximum dans le plan de référence (plan de base de l'échantillon), tandis qu'elle décroît au fur et à mesure qu'on s'éloigne de celui-ci.

Ce type de diagramme est maintenu jusqu'à pF 4,8 (41 % d'eau), qui représente notre dernière mesure. Ainsi, les phases de l'organisation intervenant entre pF 3 et pF 4,8, c'est à dire à des teneurs en eau plus faibles que précédemment, sont fort différentes de celles qui existaient aux pF compris entre 2,25 et 2,75 ; ainsi, dans une première phase (pF 2,25 - 2,75), le phénomène de diffraction affecte préférentiellement un domaine angulaire donné qui devient de plus en plus étroit au fur et à mesure qu'on se rapproche de pF 2,75. Cette phase marque sans nul doute l'effondrement complet de l'organisation initiale isotrope.

La seconde phase (pF 3 - pF 4,8), quant à elle, laisserait penser que les unités morphologiques entrent en contact.

Il est manifeste toutefois que notre approche de l'évolution de l'organisation reste encore imparfaite et que nous n'aurons pas trop des méthodes de visualisation pour cerner de plus près ce problème.

\*  
\* \*

.../...

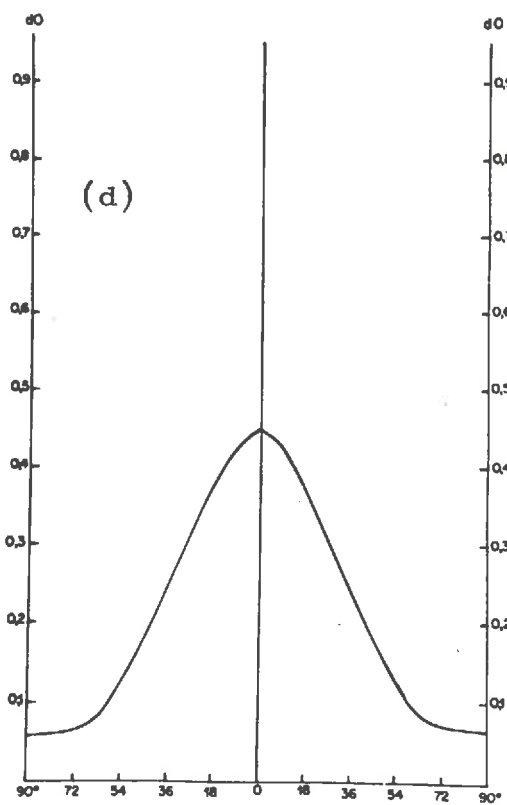
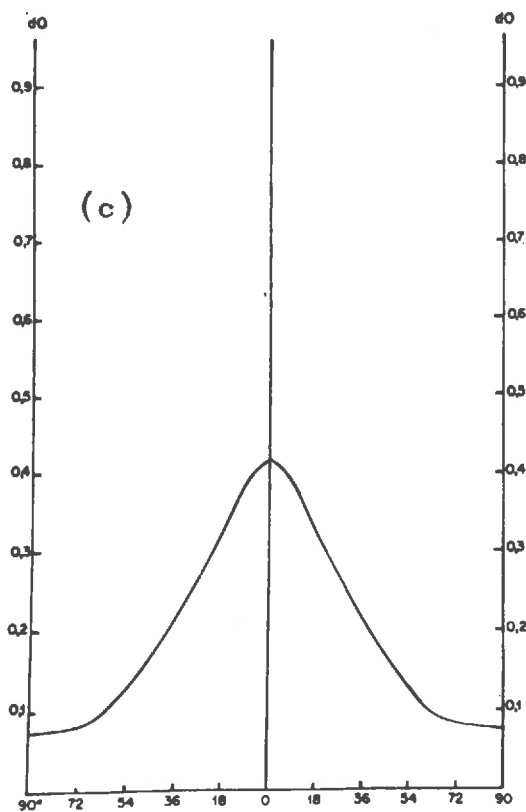
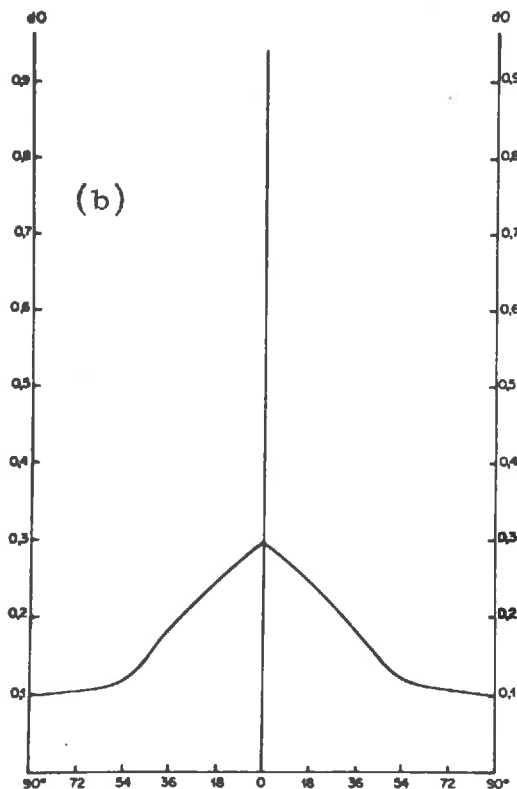
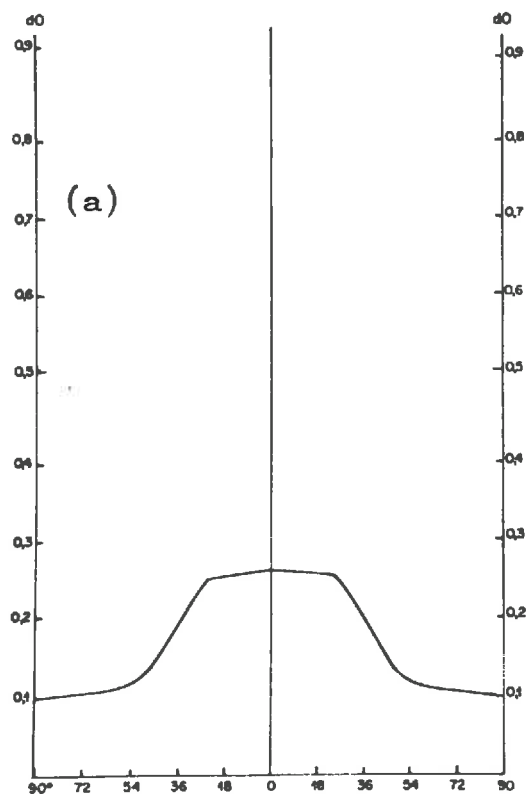


Fig. 31 - Spectres de rayons X réalisés sur la montmorillonite :

(a)	$pf_{2,75}$	;	$R = 2,65$ ;	orientation préférentielle $\pm 42^\circ$
(b)	$pf_3$	;	$R = 2,95$ ;	" " $\pm 31^\circ$
(c)	$pf_{3,5}$	;	$R = 5,50$ ;	" " $\pm 30^\circ$
(d)	$pf_{4,8}$	;	$R = 6,75$	" " $\pm 32^\circ$

Enfin, il convient de rassembler les observations que nous avons effectuées à pF 4,4. Pour cette valeur du pF (73 % d'eau), toutes les courbes de distribution que nous avons réalisées correspondent à un indice d'orientation plus faible que précédemment. Ainsi, la figure 32 montre un spectre réalisé à pF 4,4 et dont  $R = 4$ . Remarquons que la courbe de gauss conserve une forme normale, mais qu'elle devient plus aplatie.

A propos de ce fait, plusieurs explications peuvent être envisagées et notamment qu'à cette teneur en eau, la méthode de coupe ne conviendrait plus, car elle provoquerait une perturbation dans l'organisation interne, cette perturbation se situant à un niveau relativement global.

Ajoutons aussi qu'étant donné la teneur en eau, il est peu probable qu'un réarrangement de grande amplitude puisse se produire à ce stade du retrait.

\*  
\* \*

#### b) Etude de l'hydratation interfeuillets

Nous avons caractérisé le degré d'orientation des particules en utilisant la diffraction des rayons X. Ce type d'étude n'est pas habituel ; en revanche, la méthode est généralement utilisée pour caractériser les paramètres de la maille cristalline des argiles.

Dans le cas de la montmorillonite, l'épaisseur des feuillets étant variable en fonction de la teneur en eau, il convient d'examiner en même temps les variations du paramètre (001) au cours des diverses phases du retrait.

Pour des teneurs en eau  $< 73\%$ ,  $d(001)$  reste toujours très voisin de  $20 \text{ \AA}$ . Or, ceci signifie que, dans la plus grande partie de l'essai, le retrait que nous avons observé sur la montmorillonite Ca se produit sans modification de l'épaisseur apparente des feuillets ; nous pouvons donc conclure qu'à l'intérieur de ce domaine, le retrait affecte essentiellement l'eau située entre les particules primaires.

.../...

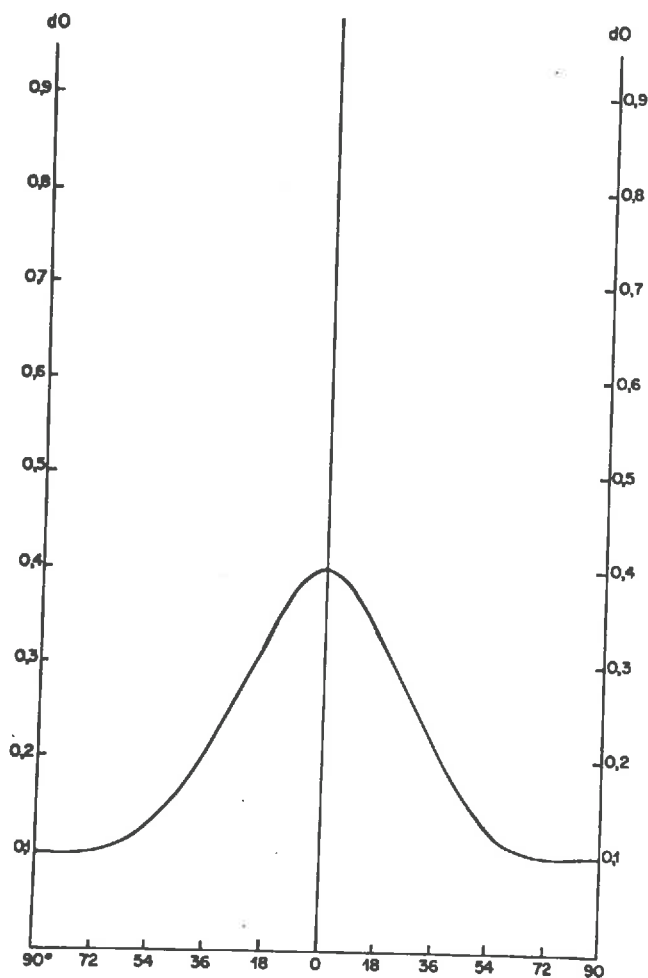


Figure 32 : Spectre de rayons X réalisé sur la montmorillonite à  $pF_{4,4}$  et pour lequel  $R = 4$ .

En revanche, à pF 4,8 (95 % d'humidité relative) d(001) tombe à 15,5 Å ; le passage de pF 4,4 à pF 4,8 provoque ainsi l'expulsion d'une partie de l'eau interfoliaire.

L'état d'hydratation à 20 Å correspondant à l'existence de 3 couches d'eau entre les feuillets, le passage à 15,5 Å correspond au départ d'une couche d'eau ; le minéral n'est donc plus à ce stade hydraté qu'à deux couches d'eau. Ces données sont conformes aux résultats présentés par de nombreux auteurs et en particulier par MERING (1946), BARSHAD (1953), QUIRK (1968), NORRISH (1954), EMERSON (1962) BANIN et LAHAN (1968) qui confirment que d(001) de la montmorillonite ne dépasse jamais 20 Å.

#### 4° Données sur l'observation directe de l'organisation interne

Nous avons appliqué jusqu'à maintenant les méthodes d'observation aux seuls échantillons ayant subi toutes les phases du retrait. Mais, dans le cas de la montmorillonite, et du fait des fortes teneurs initiales en eau, il était intéressant de pouvoir suivre l'évolution du volume au cours des diverses phases du retrait.

Nous reproduisons dans la figure 33, un schéma des diverses formes géométriques observées sur l'échantillon au cours des phases successives. Ainsi, au départ, l'échantillon est parfaitement cylindrique ; à pF 1, le retrait affecte le diamètre et l'épaisseur de l'échantillon, mais celui-ci garde sa forme. A pF 2, le retrait se produit sans déformations importantes ; en revanche, à partir de pF 3, le retrait affecte surtout l'épaisseur du pâton ; aussi une légère déformation apparaît qui devient très accentuée à pF 3,5

\*  
\* \*

Nous pouvons tenter de relier ces différentes formes géométriques aux études de l'organisation interne qui ont été rapportées dans le paragraphe précédent. A pF 1, l'organisation est parfaitement isotrope, l'échantillon conserve intégralement sa forme cylindrique. A pF 2,25, une orientation s'est produite, mais

.../...

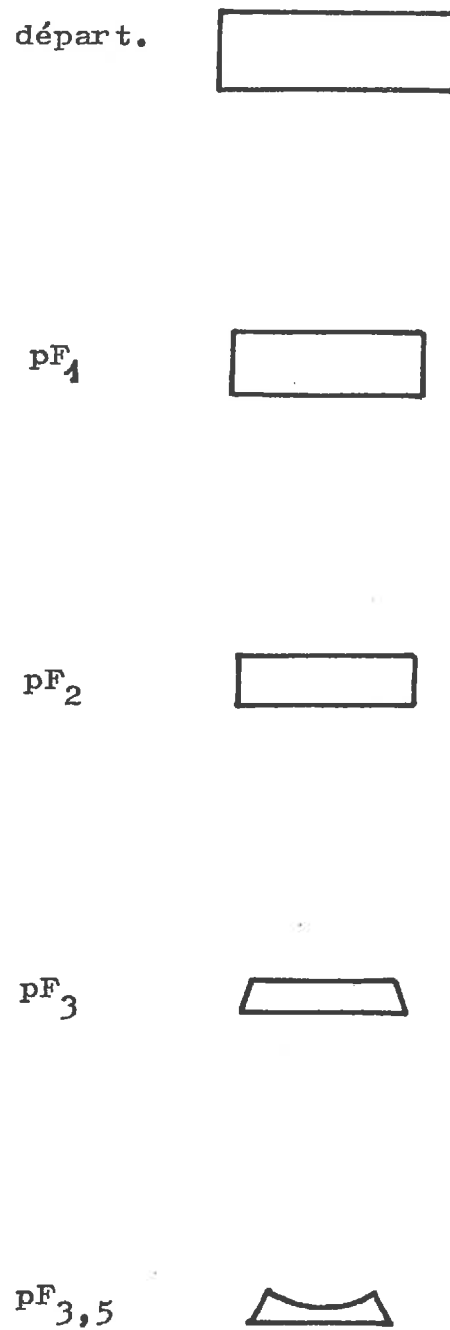


Fig. 33 - Déformation des pâtons de montmorillonite au cours du phénomène de retrait.

elle n'affecte qu'une fourchette angulaire donnée ; aussi, cette phase du retrait très importante ne provoque pas de déformation marquée. En revanche, l'apparition de courbes de GAUSS normales se produit concomitamment avec la déformation des pâtons. Nous assistons sans aucun doute à une réorganisation des unités morphologiques, ce qui implique nécessairement le développement d'une déformation.

Enfin, au delà de pF 3,5, l'échantillon diminue de volume ; il serait hasardeux toutefois de tenter de suivre l'évolution de ses paramètres.

\*  
\* \*

Nous avons ensuite étudié les gâteaux au stade ultime de la dessiccation en examinant tout d'abord la tranche à la loupe binoculaire (photo 7). Celle-ci ne permet pas d'identifier une porosité d'origine fissurale. La fracturation du pâton est d'ailleurs très difficile à réaliser, l'argile étant très cohérente. Ultérieurement, nous avons observé la même tranche au Stéréoscan, d'abord à un grossissement X 1100 (photo 8), ce qui confirme les résultats obtenus à la loupe binoculaire. Ainsi dans le cas de la montmorillonite, la porosité du matériau est essentiellement d'origine texturale. Aux forts grossissements, l'orientation apparaît nettement et affecte de manière uniforme toute la tranche observée. Les photos 9 et 10 rendent compte du type d'organisation au sein du matériau. Nous constatons qu'il s'agit ici d'ensembles texturaux à développement planaire particulièrement important que nous appellerons "rubans" et qui jouent le rôle d'unités morphologiques. Ceux-ci, qui sont très chiffonnés et parfois repliés sur eux-mêmes, s'empilent à la manière de feuilles de papier superposées les unes aux autres. Si nous essayons de proposer une dimension à ces rubans nous sommes amenés à leur donner un diamètre qui dépasse souvent  $2 \mu$ , associé à une épaisseur qui semble inférieure à  $200 \text{ \AA}$  ; elle est donc voisine de l'épaisseur de la particule primaire, telle que nous l'avons définie antérieurement.

Ceci montre que, dans la montmorillonite, l'association des particules primaires se fait préférentiellement bord à bord pour constituer des rubans ; ce sont eux qui semblent donc jouer le rôle

.../...





Fig. 7 - Echantillon de montmorillonite ; observation de la tranche du p $\hat{a}$ ton - loupe binoculaire x 10.

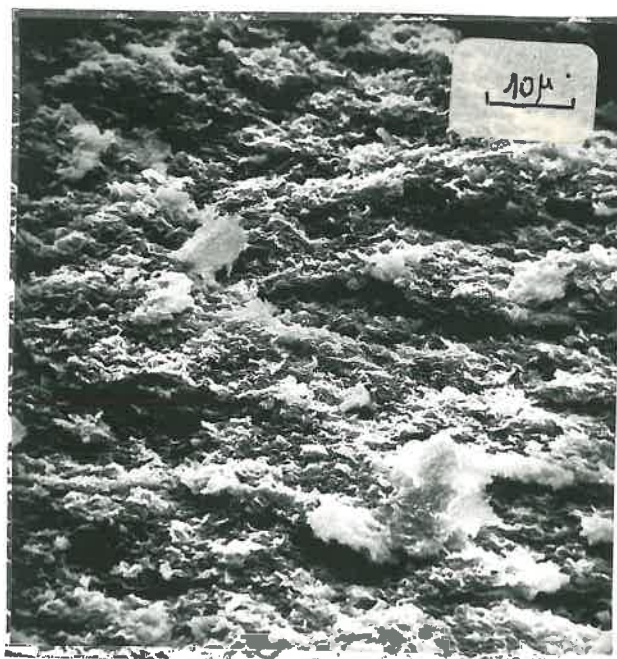


Fig. 8 - Echantillon de montmorillonite ; observation de la tranche du p $\hat{a}$ ton - MEB x 1100 -

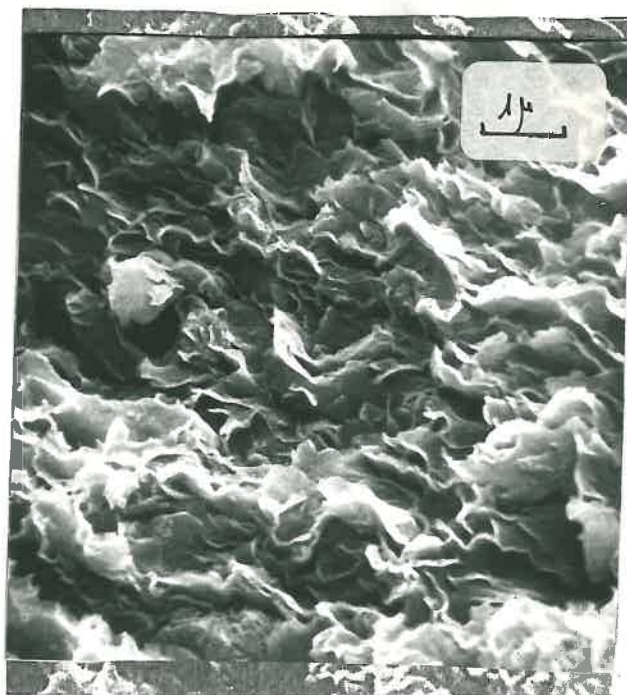


Photo 9 - Echantillon de montmorillonite ; observation de la tranche du p $\hat{a}$ ton (faisceau d'electrons parall $\grave{e}$ le au plan de r $\acute{e}$ f $\acute{e}$ rence) - MEB x 11000 -



Photo 10 - Echantillon de montmorillonite ; observation de la tranche du p $\hat{a}$ ton (faisceau d'electrons parall $\grave{e}$ le au plan de r $\acute{e}$ f $\acute{e}$ rence) - MEB x 22000 -

d'unités morphologiques de grande dimension, dont nous pouvons pressentir l'intervention aux forts états d'hydratation.

Par ailleurs, si nous observons l'échantillon perpendiculairement au plan d'orientation (cf photo 11), nous constatons l'existence de raccordements entre les rubans ; ceux-ci paraissant s'effectuer préférentiellement bord-face, et parfois face-face ; la plupart de ces associations sont conservées jusqu'à la phase ultime du retrait. Elles conduisent à l'individualisation d'une sorte de "treillis" rubanné continu dont nous pouvons, dans une certaine mesure, définir la maille ; en revanche, il est assez souvent difficile d'indiquer l'emplacement exact des discontinuités. C'est pourquoi nous conviendrons que l'unité morphologique caractéristique de l'organisation présente une dimension qui correspond sensiblement au paramètre de la maille du treillis rubanné. Cela étant, en retraçant l'histoire hydrique de la montmorillonite, nous verrons comment cette dimension est en liaison très étroite avec le degré d'hydratation de l'argile.

### 5° Description de l'évolution de l'organisation du matériau au cours du retrait

#### a) Etat d'organisation du matériau consécutif à la préparation des échantillons

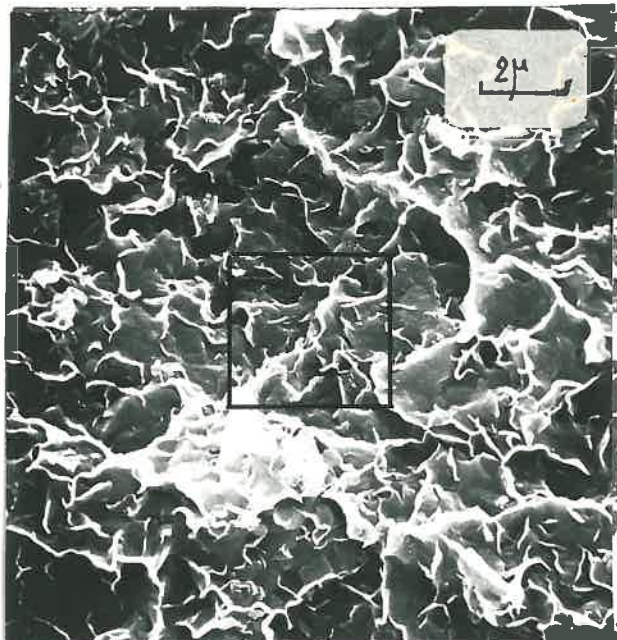
La première opération à avoir été entreprise sur le matériau montmorillonitique est celle de la dispersion. Les mesures approximatives qui ont pu être réalisées sur ce type de minéral, indiquent que la plupart des particules contenues dans la suspension d'argile dispersée stable ont un diamètre  $< 1 \mu$ .

Compte tenu des observations que nous avons effectués sur le matériau après séchage sous vide, et qui font apparaître une structure rubannée continue, il est clair que l'opération de dispersion aboutit à diviser les unités morphologiques pouvant exister à un stade de dessiccation plus avancé (figure 34). Rappelons qu'un certain nombre de discontinuités apparaissent sur les unités morphologiques à une échelle voisine de  $0,1 - 0,2 \mu$ , ce qui correspondrait à la mise en évidence de particules libres.

.../...



(a)



(b)



- Photos 11 - Echantillon de montmorillonite ; faisceau d'électrons perpendiculaire au plan de référence : mise en évidence de liaisons bord face entre les unités morphologiques :
- (a) - vue générale de l'assemblage - MEB x 5500.
  - (b) - vue de détail - MEB x 22000.

Ces données sont d'ailleurs conformes aux travaux de MERING et OBERLIN (1971), qui montrent que sur une montmorillonite sodique observée au microscope électronique à transmission on obtient :

- Soit des particules primaires,
- Soit des particules libres composées d'un nombre limité de particules primaires associées bord à bord.

Ainsi, dans la montmorillonite, l'opération de dispersion met en jeu une énergie suffisante pour diviser les unités texturales de l'échantillon. A ce sujet, nous pouvons d'ailleurs faire quelques remarques relatives à ce comportement de l'argile :

- Ainsi, l'agitation mécanique et la présence d'un dispersant (la soude) suffisent à rompre les liaisons entre particules libres. Nous pouvons donc admettre que dans la montmorillonite, l'énergie de liaison de particule primaire à particule primaire (ou libre) est relativement faible.

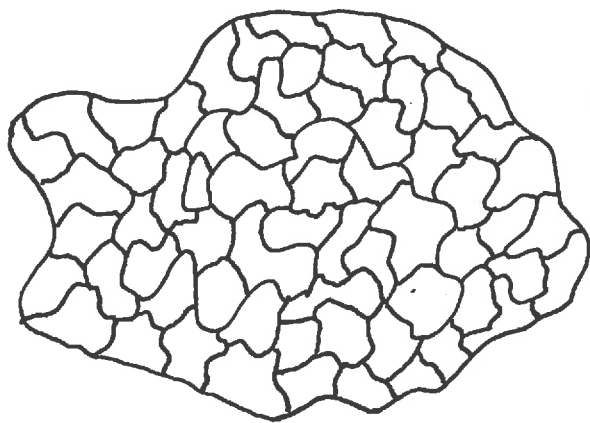
- De même, les liaisons entre particules primaires (ou libres) se faisant essentiellement bord-bord et très peu face-face, nous pouvons penser que le travail de dispersion est dans ce cas relativement facilité.

Après avoir réalisé l'opération de dispersion, nous avons ensuite amené le pH de la suspension à 6,5 et ajouté immédiatement une quantité suffisante de  $\text{CaCl}_2$ , de façon à provoquer une floculation très rapide et très complète de l'argile. Nous obtenons ainsi un regroupement de la plupart des particules qui avaient été séparées au moment de la dispersion.

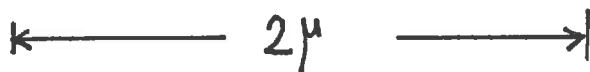
Nous pouvons difficilement accéder à l'organisation de l'argile à ce stade des opérations ; toutefois, après une série de lavages et de centrifugations successives, nous avons comme dans le cas des autres argiles, effectué un test de mesure d'orientation aux rayons X. Tous les spectres réalisés à une teneur en eau proche de 1200 %, et avant homogénéisation de la pâte argileuse n'ont révélé aucune orientation préférentielle.

.../...

Unité  
morphologique

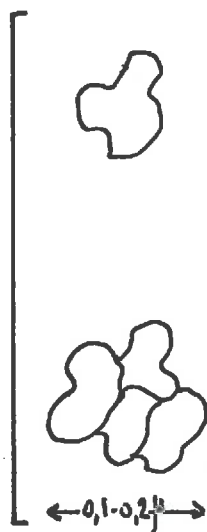


Vue de face  
(particules primaires  
associées bord à bord)



vue en coupe

Résultat de  
la dispersion



particules primaires

particules libres



Fig. 34 - Constitution des unités morphologiques de montmorillonit et mise en évidence de particules libres ou primaires lors de la dispersion.

Ajoutons que les observations au microscope à balayage nous indiquent qu'une association du type B-F entre les unités morphologiques est conservée lors de la phase finale du retrait : nous sommes donc amenés à concevoir une organisation isotrope de la montmorillonite qui se met en place de la façon suivante :

- Dans un premier stade, il se produit une association bord à bord entre les particules primaires ou libres pour former des rubans.

A l'appui de cette conception, on peut utiliser les travaux de MERING et OBERLIN (1971) qui ont montré que, sur une montmorillonite Ca étudiée au microscope électronique, les particules s'associaient bord-bord pour former des "agrégats" de grande dimension.

- Dans un second stade, les rubans s'enchevêtrent et s'associent essentiellement bord-face pour constituer une sorte de treillis continu.

Rappelons que de nombreux auteurs ont mis en évidence la formation d'une architecture tridimensionnelle lâche, pouvant occuper un volume considérable et qui semblait résulter d'un assemblage bord-bord ou bord-face entre particules. Parmi ceux-ci, citons WEISS, FAHN et HOFMANN (1952), VAN OLPHEN (1973).

#### b) Evolution de l'organisation

Signalons tout d'abord qu'à 750 % d'eau, la pâte argilleuse venant d'être homogénéisée possède une cohésion limitée ; il est impossible dans ces conditions, de mouler un gâteau de 1 cm d'épaisseur, sans qu'il se déforme en quelques minutes. A cette teneur en eau, le matériau possède donc déjà toutes les qualités d'une argile thixotropique(\*).

---

(\*) La thixotropie est un comportement caractéristique de certaines argiles qui, aux fortes teneurs en eau, peuvent passer de l'état rigide (gel) à l'état liquide par simple agitation. Mais, en laissant le matériau au repos, celui-ci retrouve rapidement ses propriétés initiales.



Cela étant, nous appliquons ensuite la contrainte pF 1 (10 g/cm<sup>2</sup>). A ce stade, qui correspond à 500 % d'eau, le matériau possède une parfaite rigidité ; il se découpe très bien avec un fil de faible section (2/100 mm).

Cette première phase du retrait s'est produite sans que l'argile présente des spectres orientés aux rayons X ; l'organisation reste parfaitement isotrope.

Si nous poursuivons l'examen du matériau à pF 1,25 ; 1,50 ; 1,75 ; 2,0, l'argile perd comme nous l'avons vu de l'eau en quant importante en assurant encore un retrait de caractère isotrope.

Pour expliquer ce comportement entre pF 1 et pF 2,0, nous sommes amenés à proposer le système d'interprétation suivant.

#### Utilisation d'un modèle cubique

A partir du moment où le matériau argileux acquiert une certaine rigidité, c'est qu'une architecture tridimensionnelle existe et qu'elle résulte d'une disposition bord-face (B-F) des unités morphologiques. Connaissant alors la teneur en eau et la surface externe mise en jeu, nous pouvons, à partir du film d'eau uniformément réparti sur toute la surface externe, concevoir un système géométrique et avoir ainsi une idée sur l'aspect de celui-ci aux fortes teneurs en eau.

Admettons par exemple que l'arrangement tridimensionnel considéré délimite des pores de section cubique dont l'arête C de <sup>taille égale à</sup> l'unité morphologique définie précédemment.

Si H est la teneur en eau et S la surface externe de l'argile, l'épaisseur du film d'eau uniformément réparti sur toute cette surface s'écrit :  $\frac{H}{S} = e$

Examinons maintenant les relations entre c et e ; en négligeant le volume de la matière solide, et la teneur en eau interne aux feuillets (35 %), le volume du pore unitaire, pour un teneur en eau H, doit être égal à  $6 c^2 \times e = c^3$ . On en déduit alors que  $c = 6 e$ .

.../...

A partir de ces données et avec une surface externe de 60 m<sup>2</sup>/g, on obtient aisément les valeurs de C pour différentes teneurs en eau :

$$2400 \% \quad C = 2,4 \mu$$

$$1200 \% \quad C = 1,2 \mu$$

$$600 \% \quad C = 0,6 \mu$$

$$300 \% \quad C = 0,3 \mu$$

Compte tenu des données microscopiques relatives à la dimension des unités morphologiques qui, rappelons-le, sont voisines de 2  $\mu$ , il est vraisemblable qu'à 1200 % d'eau, le matériau a déjà acquis une structure tridimensionnelle et même que cette structure est déjà chiffonnée puisque l'on trouve  $C < 2 \mu$ .

Cela étant, la dimension des unités morphologiques restant fixe, nous constatons que le diamètre moyen des pores peut évoluer considérablement, ce qui implique des possibilités de déformation très importantes.

Au total, si ce modèle n'est pas très loin de la réalité, nous pouvons en tirer un certain nombre de conclusions relatives à la mise en place des unités morphologiques et au comportement du matériau aux diverses teneurs en eau.

#### Mise en place et évolution de l'organisation tridimensionnelle isotrope

Comme nous l'avons vu, la dimension des unités morphologiques paraît identique tout au long des différents stades de la dessiccation. Ceci nous incite à penser que le comportement du matériau est conditionné par le nombre de particules primaires formés par l'empilement de 15 feuillets, qui s'associent bord à bord, de façon à former des rubans de dimension donnée au moment de la floculation. Après floculation, il n'y aurait plus de possibilités de réorganisation des unités morphologiques ainsi constituées et le comportement du matériau découlerait principalement de la mise en jeu de paramètres stériques.

Ainsi, aux teneurs en eau importantes, c'est à dire non compatibles avec l'existence d'un système poreux à organisation tridimensionnelle, celle-ci existerait mais sous une forme discontinue. Dans ces conditions, le matériau ne serait pas cohérent ; c'est ce type de comportement, qui existe très probablement au-dessus de 2000 % d'eau.

En revanche, dès qu'une architecture tridimensionnelle continue se met en place, le matériau apparaît comme étant parfaitement cohérent. Au demeurant, l'organisation reste encore fragile et il suffit d'une légère perturbation pour détruire cette architecture ; d'où l'apparition des phénomènes thixotropiques.

Enfin, dès que la teneur en eau devient inférieure à une certaine quantité, l'organisation devient instable : le système poreux s'effondre et s'oriente.

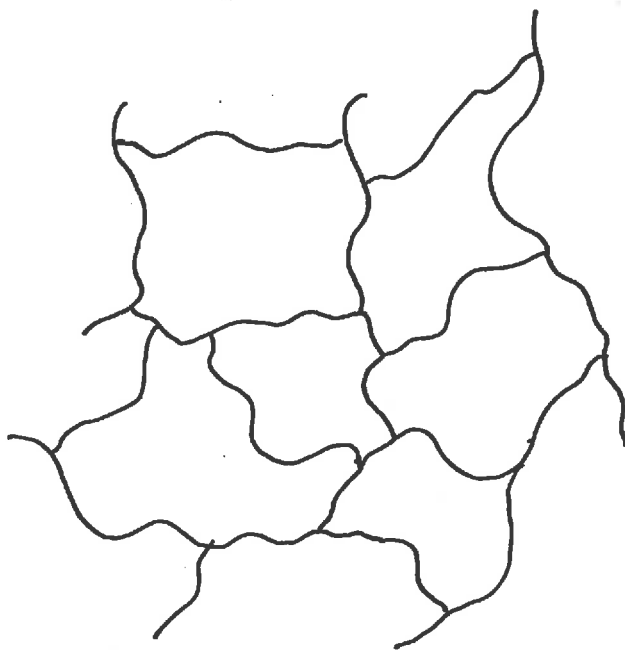
Remarquons toutefois, que si globalement l'organisation du matériau paraît s'effectuer de la sorte, le mécanisme de l'organisation semble un peu plus complexe. En effet, le domaine caractérisé par une architecture tridimensionnelle isotrope n'est pas fugace, puisque nous ne notons pas d'orientation des particules jusqu'à 370 % d'eau.

Si toutes les unités morphologiques se trouvent au contact bord-face à 1200 % d'eau, cela veut dire à fortiori qu'à 370 % elles le sont toujours (\*) ; ceci signifie donc qu'elles sont capables d'occuper un volume plus restreint. Si nous tentons de schématiser un tel comportement du matériau, (cf figure 35), nous arrivons à la disposition 1 à 1200 % et la disposition 2 à 370 %. Nous constatons d'ailleurs que ce dernier implique une certaine déformation, une sorte de plissement à propos duquel nous sommes amenés à faire les quelques remarques suivantes :

---

(\*) nous admettrons à ce stade de l'étude que les liaisons bord-face ne sont pas rompues

Disposition 1 :  
1200 % d'eau



Disposition 2 :  
370 % d'eau

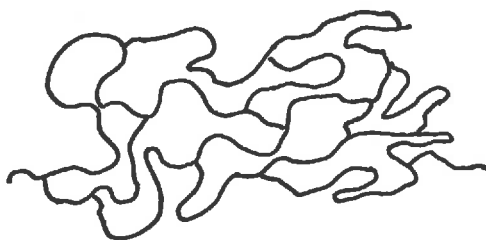


Fig. 35 - Représentation schématique de l'arrangement à  
1200 et 370 % d'eau.

- La montmorillonite est une argile possédant des unités morphologiques très déformables. Ces déformations sont probablement plus aisées que dans les autres types d'argiles, étant donné qu'il n'existe pas ou peu d'association face-face des particules primaires conduisant à des agrégats, mais seulement des liaisons bord-bord entre particules primaires, qui joueraient un rôle de charnières.

- Au demeurant, cette déformation n'est certainement pas infinie, du fait que les rubans possèdent une certaine rigidité. Ceci nous permet de passer au stade suivant de l'étude, c'est à dire d'examiner, ce qui se produit vers pF 2,5.

#### Passage à une organisation anisotrope

Jusqu'à pF 2 ( $H = 370 \%$ ), le retrait était de nature isotrope et les rayons X ne faisaient apparaître aucune orientation. En revanche, à partir de pF 2,5 notamment, le retrait s'effectue de manière anisotrope et n'affecte donc que l'épaisseur de l'échantillon. A ce stade, l'orientation préférentielle des particules apparaît et les spectres de rayons X conduisant à des courbes de GAUSS tronquées : ainsi, les particules semblent occuper toutes les positions à l'intérieur d'une fourchette angulaire donnée. Ce domaine angulaire va d'ailleurs en se resserrant au fur et à mesure qu'on se rapproche de pF 3.

En conservant le modèle cubique que nous avons présenté, antérieurement, on arrive à affecter une valeur de  $0,3 \mu$  au diamètre du pore pour  $300 \%$  d'eau. Il n'est donc pas étonnant que notre système poreux (treillis) s'effondre ; mais comme cela se fait progressivement, le contact face-face n'est pas du tout parfait, ce qui explique l'individualisation des courbes tronquées décrites précédemment.

Enfin, lorsque nous passons à pF 3 et au-delà, l'intensité diffractée est de plus en plus importante et prend l'allure d'une distribution normale.

Cette phase du retrait, met en jeu des énergies importantes et provoque l'expulsion de la plus grande partie de l'eau externe.

Compte tenu du fait que  $d(001) = 20 \text{ \AA}$ , la distance entre deux unités morphologiques parfaitement parallèles, serait de

- 400  $\text{ \AA}$  à 155 % d'eau
- 200  $\text{ \AA}$  à 95 % d'eau
- 100  $\text{ \AA}$  à 50 % d'eau

Nous voyons qu'à ces teneurs en eau, nous arrivons en pratique à un véritable contact solide-solide (cf photos 9 et 10). Ainsi, les particules doivent s'aplatir, s'emboîter, glisser les unes sur les autres de façon à occuper un volume plus restreint. Il n'est d'ailleurs pas étonnant qu'une déformation apparaisse à ce stade : c'est en quelque sorte une conséquence des contraintes devant être mise en jeu pour mettre au contact des particules très fortement ondulées et pour expulser en même temps la plus grande partie de l'eau externe vers  $\text{pF } 4,8$ .

Cela étant, notons que cette phase du retrait ainsi que toutes celles qui l'ont précédée, se sont produites sans qu'il y ait eu modification de l'épaisseur apparente des feuillets ; par voie de conséquence, au niveau de cette étude, nous sommes amenés à considérer qu'il n'y a pas eu départ d'eau participant à l'hydratation des cations interfoliaires. D'autre part, les études au microscope électronique semblent confirmer qu'un grand nombre de liaisons bord-face interunités morphologiques sont conservées lors du retrait. Ceci signifie donc que le retrait de la montmorillonite met en oeuvre des interactions de type bord-face, qui sont relativement de grande énergie.

Par la suite, lorsque nous passons à  $\text{pF } 4,8$ , l'expulsion de deux couches d'eau interne aux feuillets se produit, ce qui porte l'épaisseur apparente des feuillets à  $15,5 \text{ \AA}$ . A ce niveau, nous ne savons plus comment répartir l'eau, autour et dans les particules primaires, car nous ne pouvons savoir si les espaces interfeuillets sont remplis complètement. En supposant que ce le soit ainsi, la couche d'eau externe passe à  $30 \text{ \AA}$ , soit 10 couches d'eau monomoléculaires, c'est à dire qu'elle est deux fois moins importante qu'à  $\text{pF } 4,8$ . Comme nous le verrons, ces différences

considérations aideront à comprendre les propriétés mécaniques de l'argile ; en effet, ce n'est que lorsque le film d'eau externe est suffisamment épais qu'il assure une "lubrification" entre les unités morphologiques.

Enfin, notons que, dans le domaine des teneurs en eau inférieures à 40 %, le retrait quoique faible continue à se produire ; la montmorillonite n'a donc pas l'air d'avoir de limite de retrait, au moins dans les domaines de contraintes que nous avons appliqués au cours de cet essai.

\*  
\* \*



C - ILLITE -1° Brefs rappels sur les propriétés générales du matériau utilisé

L'illite du Puy en Velay est une phyllite 2/1 dioctaédrique à dominante ferrifère. Dans le matériau, les feuillets élémentaires sont associés par groupe de 7 environ et constituent ainsi une particule primaire. Au sein de cette particule, le potassium situé entre les feuillets compense les charges internes et bloque toute hydratation et expansion interfoliaire.

A l'extérieur des particules, le déficit de charge correspondant aux substitutions ainsi que le déficit de charges superficielles sont compensés par des cations, qui peuvent être différents du potassium, et notamment par du calcium, puisque dans les essais rapportés ici, nous avons rendu au départ l'argile calcique.

L'étude des propriétés morphologiques réalisée au microscope électronique a révélé que les particules primaires sont associées bord - bord et face - face. Ces particules primaires forment donc des agrégats, qui peuvent être de taille et de forme variables. Notons en outre que chaque agrégat possède de ce fait une certaine porosité interparticulaire, qui est d'ailleurs plus ou moins accessible à l'eau. C'est là un point à retenir, car nous verrons que ce type d'agencement confère au matériau certaines propriétés caractéristiques. Nous avons constaté ainsi que la surface externe mesurée au BET est importante (135 m<sup>2</sup>/g). Rappelons enfin que la capacité d'échange en cations est de 30 m.e. pour 100 g.

2° Mesures globales caractérisant le retrait

Nous avons regroupé dans le tableau XIII les résultats relatifs aux mesures globales du volume correspondant à une contraction donnée. Nous nous référerons à ce tableau général pour obtenir les valeurs exactes, qui ont été utilisées sur les diagrammes et courbes ci-après.

Tableau XII - Mesures globales caractérisant le retrait de l'illite. Les résultats ont été calculés pour une densité réelle de 2,80 (35,7 cm<sup>3</sup> pour 100 g de solide)

Hauteur de chan- son	Volume total pour 100 g de solide	Volume d'eau pour 100 g de solide	Volume d'air pour 100 g de solide	Porosité totale en pour cent	Porosité occupée par l'air (% volume total)	Quantité d'eau extraite entre deux équilibres successifs
1e	174,0	137,0	1,3	79,5	0,7	
	135,1	97,7	1,7	73,6	1,2	
0	126,5	89,3	1,5	71,2	1,0	2,4
	116,6	80,0	0,9	69,4	0,7	9,3
	102,2	66,5	0	65,0	0	13,5
	92,2	55,8	0,7	61,3	1,2	10,7
	85,8	48,5	1,6	58,4	1,9	7,3
	82,1	43,6	2,8	56,5	6,6	4,9
	79,0	38,2	5,1	54,8	10,0	5,4
	81,0	36,6	8,7	55,9	10,7	1,6
	66,7	28,9	7,1	46,5	10,6	7,7
	65,3	9,5	20,1	45,3	30,8	19,4
5	65,5	7,2	22,6	45,5	34,4	2,3
0	65,2	3,8	25,7	45,2	39,3	3,4
0	65,1	0,1	29,2	45,1	45	3,7

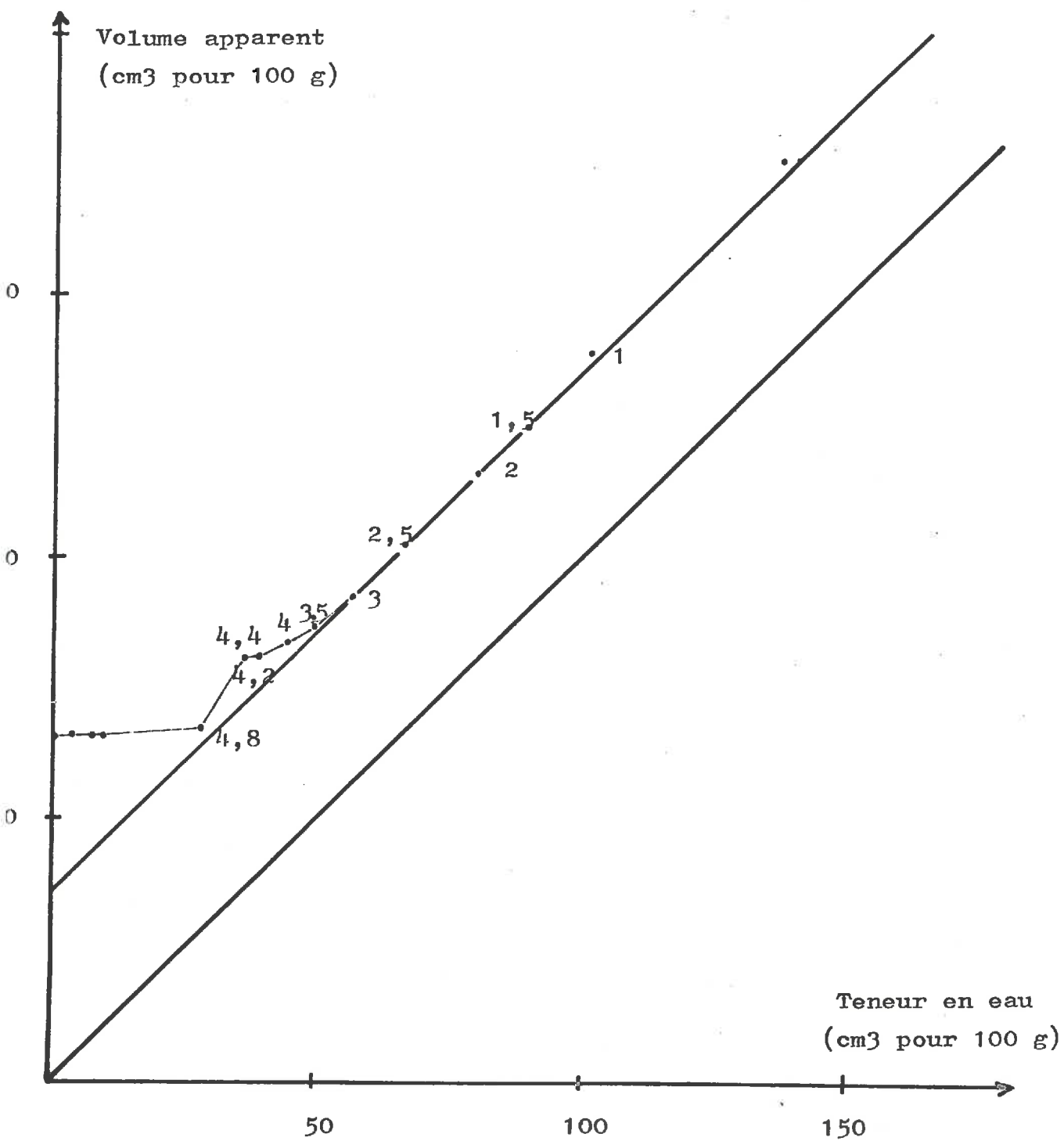


Fig. 36 - Courbe de retrait de l'illite

a) Relation volume - teneur en eau

La figure 36 présente la courbe de retrait obtenue dans cet essai. La densité réelle du matériau évaluée à partir de la formule structurale est de 2,80 ; dans ces conditions, 100 g de solide occupent 35,7 cm<sup>3</sup>.

L'échantillon, préparé selon le protocole décrit précédemment, représente au départ l'état saturé. Lorsqu'on amène le pâton à des teneurs en eau plus faibles, la diminution du volume obtenue est égale à la quantité d'eau extraite ; en effet, tous les points sont alignés sur une parallèle à la première bissectrice, dont l'ordonnée à l'origine est  $100/\rho = 35,7$  cm<sup>3</sup> pour 100 g de solide.

Dans cette gamme de teneurs en eau, la réduction du volume procède donc d'une sorte de rapprochement des unités morphologiques, ce dernier résultant de l'élimination d'une quantité d'eau correspondant à la diminution du volume. Le retrait obtenu s'effectue de la sorte en milieu saturé.

En deçà de 48 % d'eau (pF 3,5), le volume apparent de l'échantillon subit un retrait, qui devient inférieur au volume de liquide extrait ; l'échantillon n'est alors plus saturé en eau et une partie de la porosité est occupée par de l'air. Ce phénomène continue à se manifester jusqu'à des teneurs en eau inférieures à 29 % (pF 4,8), teneur à partir de laquelle, le volume ne change plus ; on a ainsi atteint la limite de retrait.

Dans le cas de l'illite, comme pour les autres argiles, le retrait du matériau se produit donc tout d'abord en milieu saturé ; mais, dans une seconde phase, nous atteignons une sorte de limite volumique, qu'on appelle "limite de retrait". Il convient de signaler toutefois qu'à la limite de retrait, la porosité globale de l'illite est importante, puisqu'elle est égale à 45 %. En réalité celle-ci est la somme des porosités existant à divers niveaux, et parmi lesquelles on peut citer :

- . la porosité au sein des unités morphologiques,
- . la porosité interunités morphologiques,
- . une porosité fissurale qui reste à définir

En ce qui concerne cette dernière, il nous est possible, après fragmentation des pâtons d'illite, de constater l'existence éventuelle d'une porosité fissurale. Sans entrer ici dans les détails de la description de l'organisation interne, indiquons néanmoins que celle-ci existe dans ce matériau et qu'elle revêt même une certaine importance.

#### b) Relation contrainte-teneur en eau (figure 37)

La première contrainte appliquée à l'échantillon correspond à pF 1, c'est à dire à 10 g/cm<sup>2</sup>. A cette contrainte, le minéral est peu hydraté (98 % d'eau) ; de ce fait, la diminution du volume de l'échantillon sera limitée et de beaucoup inférieure à celle de la montmorillonite aux mêmes états de contrainte.

Nous avons ensuite appliqué des contraintes successives croissantes de 0,5 en 0,5 unité pF au cours d'une première phase de l'expérience.

Contrairement à ce que nous avons observé dans la montmorillonite, la courbe contrainte - teneur en eau présente d'une manière générale des accidents beaucoup moins marqués. Nous relevons entre pF 1 et 2, un départ d'eau plus réduit qu'entre pF 2 et 3. De même entre pF 3 et 4,4, celui-ci demeure plus faible qu'entre pF 4,8 et 5,4.

Nous mettons ainsi en évidence deux zones énergétiques de plus grande sensibilité, que nous pourrions probablement relier à d'autres paramètres et notamment aux dimensions du pâton d'argile.

#### c) Etude des paramètres du retrait

La teneur en eau initiale de la pâte argileuse étant faite, la variation des paramètres du volume sera ici très limitée.

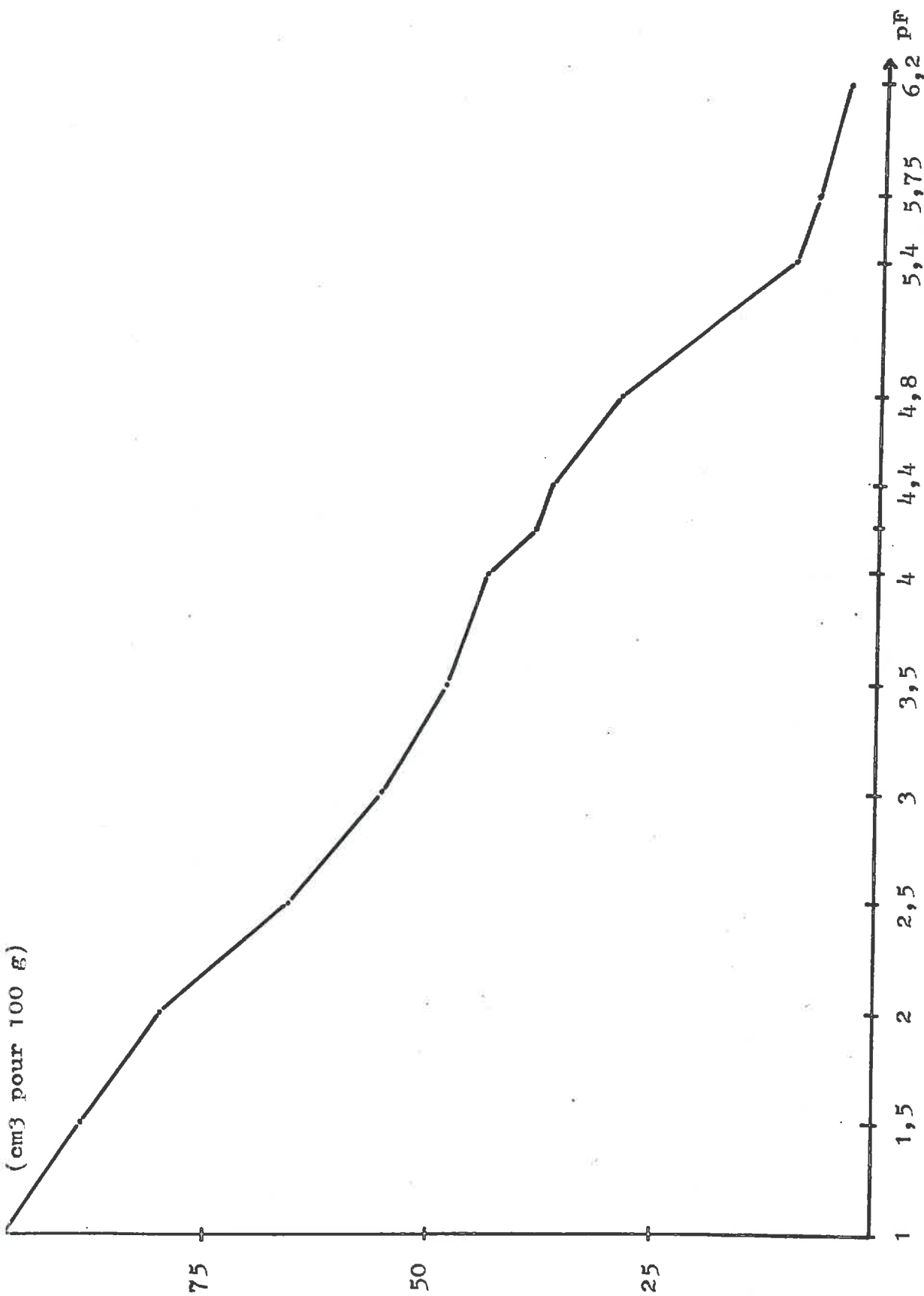


Fig. 37 - Relation contrainte-teneur en eau de l'illite

Nous avons déjà vu que les mesures du diamètre et de l'épaisseur d'un échantillon amènent à déceler une certaine isotropie ou anisotropie du retrait.

Au demeurant, si nous observons les données chiffrées  $e/e_0$  et  $d/d_0$  (tableau XIII), nous constatons que pour l'illite, la variation des paramètres du retrait est minime et que, dans toute la gamme des teneurs en eau, il est pratiquement impossible d'interpréter telle ou telle phase du retrait comme étant de nature isotrope ou anisotrope.

La précision des mesures est donc très insuffisante ; indiquons néanmoins que si le retrait affecte principalement l'épaisseur de l'échantillon, un léger retrait latéral se produit, puisque  $d/d_0$  passe de 1 sur le matériau de départ à 0,87 à la limite de retrait. Cela étant, nous n'avons pas relevé de déformations majeures sur le matériau, celui-ci gardant sa forme cylindrique.

Enfin, les constatations que nous avons effectuées sur des échantillons, dont la teneur en eau est  $\ll 29\%$ , montrent qu'à partir de ce stade, les pâtons d'argile deviennent fragiles.

Des fissures apparaissent qui débouchent même sur l'extérieur et ceci semble devoir être associé à une sorte d'effondrement de la structure. Ce changement de comportement s'accompagne d'une modification très marquée de la couleur, puisque de bleu foncé et d'aspect brillant, l'échantillon devient bleu clair et mat.

Ce phénomène intervenant quand nous soumettons le pâton à des contraintes allant de  $p_F 4,4$  à  $p_F 4,8$ , il est manifeste que ce dernier  $p_F$  s'avère suffisant pour faire évoluer le matériau vers un solide dans lequel les propriétés physiques sont sans nul doute très différentes de celles observées précédemment.

Au sujet de cette dernière question et sur celle de l'organisation du matériau dont nous ne connaissons que peu de choses à ce stade de notre démarche, l'étude par les rayons X devrait nous apporter un certain nombre de précisions complémentaires.

.../...



Tableau XIII - Paramètres du volume des pâtons d'illite.

	Teneur en eau	$e/e_0$	$d/d_0$	$e/e_0/d/d_0$	Observations
	98	0,85	0,97	0,87	
	89	0,82	0,97	0,85	
	80	0,68	0,94	0,73	
	67	0,60	0,95	0,62	
	56	0,55	0,93	0,59	
	49	0,53	0,94	0,56	
	44	0,51	0,89	0,56	
	38	0,48	0,89	0,59	
	37	0,45	0,89	0,57	
	29	0,46	0,88	0,51	← fissuration apparente et effondrement partie du pàton
	10	0,43	0,87	0,53	
5	7	0,40	0,88	0,49	
	4	0,44	0,87	0,46	
	1	0,44	0,87	0,50	

### 3° Etude de l'organisation interne à l'aide de la diffraction des rayons X

#### Condition de l'expérience

L'étude de l'orientation par les rayons X appliquée à l'illite n'a pas posé de difficultés particulières, le matériau acquérant immédiatement une cohésion suffisante pour que l'on puisse prélever un microéchantillon dans de bonnes conditions. Toutefois, les teneurs en eau étant faibles et la densité réelle du matériau élevée, il a fallu veiller, par suite des phénomènes d'absorption, à ne pas prélever des tranches de pâte argileuse supérieure à 500  $\mu$ .

Ceci étant, le plan de coupe a toujours été réalisé perpendiculairement au plan de base de l'échantillon. Aussi, lorsque l'anneau considéré présente une intensité hétérogène, l'intensité maximum obtenue avec l'anticathode de cuivre correspond aux particules, dont le plan (001) fait un angle de  $4,5^\circ$  par rapport au plan de référence. Quant à l'intensité minimum, elle résulte des réflexions provoquées par les particules orientées à  $90^\circ$ .

#### Résultats

L'étude de la pâte argileuse obtenue après floculation au chlorure de calcium, centrifugations et lavages successifs à l'eau distillée ne révèle aucune orientation préférentielle. A ce stade, nous sommes conduits à considérer l'association des unités morphologiques comme étant en majorité de type bord-face.

Après homogénéisation, nous avons alors rempli les anneaux, puis les avons soumis comme d'habitude à des contraintes croissantes.

Les courbes réalisées jusqu'à pF 2, révèlent que l'orientation reste nulle (cf figure 38 a). Ainsi cette phase du retrait ne serait pas provoquée par une orientation des unités morphologiques les unes par rapport aux autres, mais plutôt par une sorte de rapprochement de ces unités. Celui-ci serait d'ailleurs limité, car il n'affecte que 20 % du volume entre pF 1 et pF 2.

La deuxième phase du retrait apparaît brutalement à pF 2,5 et se poursuit jusqu'à pF 3 (figure 38 b et c). L'indice d'orientation  $R$  qui était égal à 1, passe à 3,5 pour pF 2,5 et à 5 pour pF 3. Cette orientation se produit lorsque la teneur en eau décroît plus rapidement que précédemment et passe de 80 à 56 % d'eau.

Dans le domaine considéré, on peut donc interpréter le retrait subi par l'échantillon, comme découlant d'une modification de l'orientation globale des particules primaires. Celles-ci ont tendance à disposer leurs faces (001) parallèlement les unes aux autres, de manière à occuper un volume plus réduit.

Si maintenant nous examinons les courbes obtenues pour les pF supérieurs à 3, nous constatons que l'indice d'orientation et la forme des courbes restent identiques (figures 38 d et 39 a et b). Pourtant, dans la zone considérée, la quantité d'eau libérée n'est pas nulle : il semble donc qu'une sorte de blocage des éléments texturaux ne permette plus, à l'aide de ce type de méthode, de mettre en évidence une évolution "visible" de l'organisation. Il faut noter qu'à ce stade, l'indice d'orientation reste faible ( $R = 5$ ) et le domaine angulaire d'orientation préférentielle assez important ( $\pm 28^\circ$ ).

L'orientation globale des particules primaires peut donc être considérée comme limitée par rapport à ce qui avait été obtenu avec de la kaolinite par exemple.

Pour expliquer ce comportement de l'illite aux teneurs en eau faibles (contraintes supérieures à pF 3), nous sommes conduits à formuler différentes hypothèses et notamment à envisager le rôle que peuvent jouer certains facteurs, tels la granulométrie du matériau expérimenté et la morphologie particulière des agrégats d'illite. Ce dernier facteur semble d'ailleurs avoir une grande importance du point de vue de la répartition de l'eau dans le matériau. Les méthodes d'observation et en particulier le microscope électronique à balayage qui permet de visualiser l'organisation interagrégats, vont nous aider à mieux comprendre le comportement de ce type de matériau.



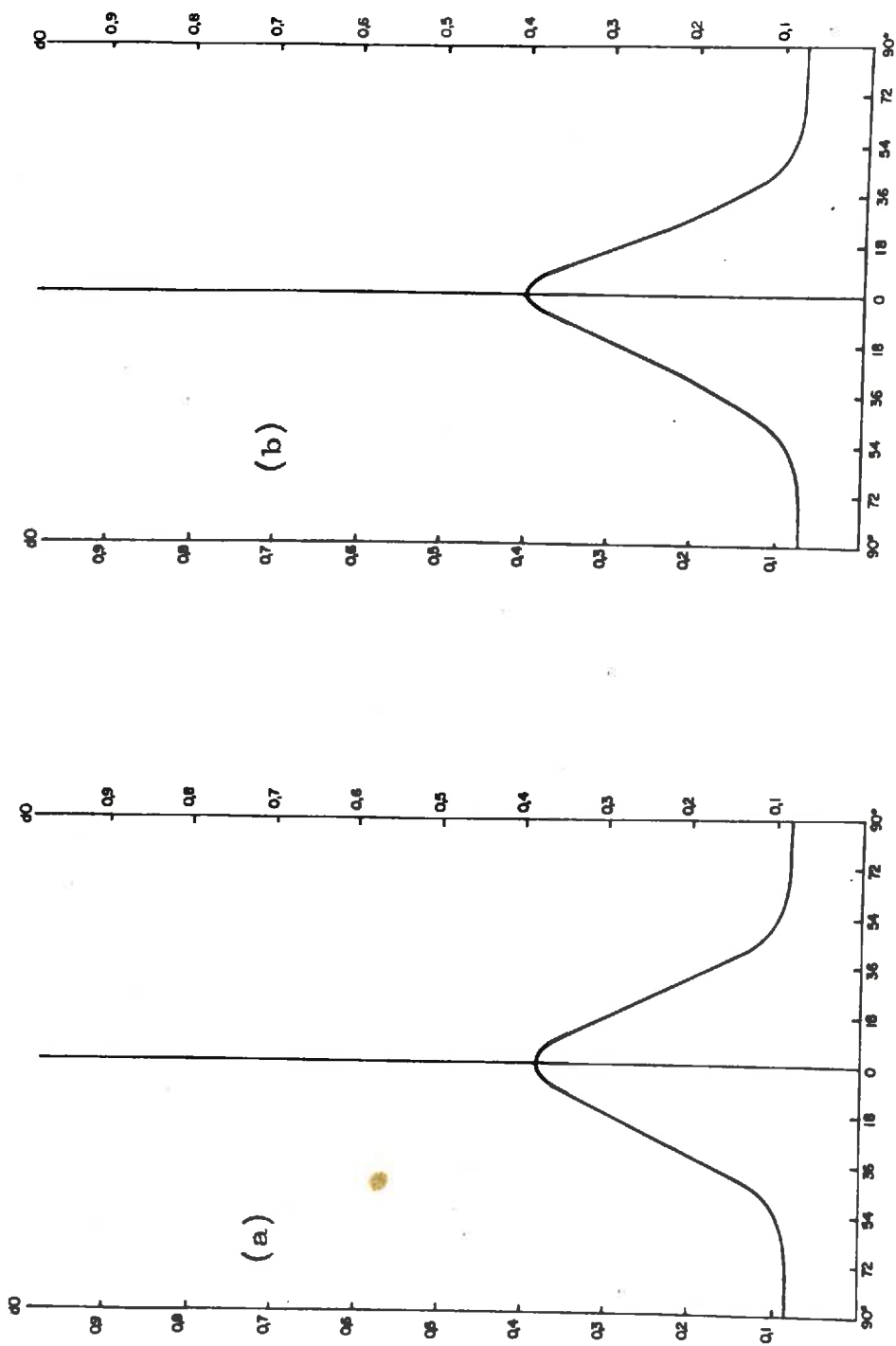


Fig. 39 -- Spectres de rayons X réalisés sur l'illite.

(a)  $\text{pF}_{4,2}$  ;  $R = 5$  ; Diffraction préférentielle  $\pm 28^\circ$

(b)  $\text{pF}_{4,8}$  ;  $R = 5$  ; " "  $\pm 26^\circ$

#### 4° Données sur l'observation directe de l'organisation interne

Rappelons que ces méthodes ont été appliquées à 2 cas extrêmes :

a) à des échantillons secs, c'est à dire ayant subi toutes les phases du retrait ; dans ces conditions, nous n'examinerons que l'organisation finale du matériau ; à ce stade, on peut considérer que l'organisation des particules est la plus compacte et, par voie de conséquence, que l'agrégation des particules est maximum ; ceci sera d'ailleurs effectivement démontré plus loin.

b) à une suspension très diluée et parfaitement dispersée ; dans ce cas, si une division des éléments texturaux se manifeste, la méthode doit nous apporter quelques informations, même partielles, sur le regroupement éventuel des agrégats.

Ainsi, les deux méthodes envisagées, microscope électronique à balayage (1er cas), ou à transmission (2ème cas), doivent nous aider à préciser les effets de l'analyse granulométrique sur le matériau et, en même temps, nous permettre de comprendre le mode d'assemblage des éléments texturaux au cours du retrait.

\*  
\* \*

#### a) Examen du matériau au microscope électronique à balayage

Nous avons d'abord fracturé un échantillon sec, perpendiculairement à son plan de base, afin d'observer la tranche de l'échantillon ainsi mise à nue. A la loupe binoculaire, c'est le développement d'un extraordinaire réseau de fissures qui frappe en premier ; celles-ci sont concentriques et débouchent en partie sur l'extérieur (photo 12) ; indiquons toutefois que le fait d'avoir fracturé le pâton a probablement accru l'ampleur de la fissuration.

.../...

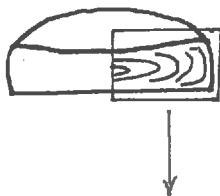


Photo 12 - Echantillon d'illite ; mise en évidence d'une fissuration concentrique très développée.  
Loupe binoculaire x 15.



Le second élément qui apparaît, c'est l'organisation des éléments texturaux qui composent l'échantillon : celle-ci ressemble tout à fait à une organisation type "pelure d'oignon" et consiste en une superposition d'écaillés de forme concentrique qui, après séparation, mesurent quelques millimètres de longueur avec une épaisseur de l'ordre du millimètre,

Si maintenant nous observons les écaillés sur la tranche en utilisant le microscope électronique à balayage, nous pouvons tenter d'accéder à l'organisation interagrégat.

Au grossissement x 550 (photo 13), un litage grossier apparaît qui est parallèle au plan de base de l'écaillé. Ce litage fait penser à une zone de décollement préférentielle, qui pourrait être à l'origine de la formation des écaillés. L'épaisseur de chaque lit oscille autour de 5 à 10  $\mu$ .

Nous pouvons accéder à l'organisation globale d'un lit en observant la photo 14 (x 5000). Ce qui frappe au premier abord, c'est le très grand désordre qui se manifeste dans l'organisation. A ce niveau, l'orientation paraît donc très limitée.

Pour décrire l'organisation élémentaire au niveau des unités morphologiques, nous utiliserons les photos 15 et 16 réalisées à un grossissement encore plus élevé (x 20 000). Comme précédemment l'aspect lié au désordre persiste, mais à ce niveau nous distinguons des unités morphologiques de forme et de taille variable, dont il est difficile de donner une limite, tant l'assemblage est compact (15). L'arrangement consiste en un enchevêtrement de ces unités morphologiques associées plutôt face-face, mais dont les éléments les plus fins occupent les interstices. Il semble aussi qu'une certaine courbure ait affecté notamment les unités morphologiques les plus grossières au cours du retrait.

En examinant plus en détail, nous avons pu avoir une idée de l'épaisseur de l'agrégat : celle-ci est de 1000  $\text{Å}$  <sup>maxi</sup> au centre, ce qui correspond à un empilement face à face de 10 particules primaires environ.



Photo 13 - Echantillon d'illite ; observation de la tranche du p $\hat{a}$ ton mettant en  $\acute{e}$ vidence un litage grossier - MEB x 550 -



Photo 14 - Echantillon d'illite ; observation de la tranche du p $\hat{a}$ ton illustrant l'organisation  $\grave{a}$  l'int $\acute{e}$ rieur d'un lit - MEB x 5500

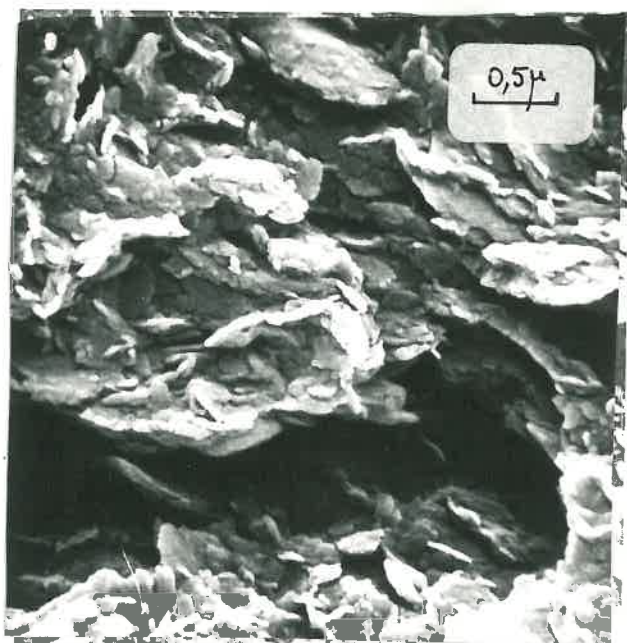
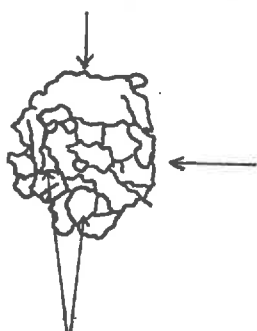


Photo 15 - Echantillon d'illite ; observation de la tranche du pàton (faisceau d'électrons parallèle au plan de référence).  
Détails de l'assemblage des unités morphologiques. MEB x 22000.

unité morphologique.



discontinuités.



Photo 16 - Echantillon d'illite ; faisceau d'électrons perpendiculaire au plan de référence. Détails sur la taille, la forme et la constitution des unités morphologiques - MEB x 22000 -

Enfin, en dirigeant le faisceau d'électrons perpendiculairement au plan de référence, nous avons pu appréhender la forme et l'architecture des agrégats. Ainsi, la photo 16 réalisée suivant cette direction, fait apparaître des agrégats dont le diamètre varie <sup>en général</sup> de 0,2 à 0,8  $\mu$  environ ; ceux-ci sont constitués de particules primaires associées bord à bord et dont la taille est proche de 500  $\text{Å}$ . Compte tenu de l'épaisseur (700  $\text{Å}$  environ), nous voyons que le nombre de particules primaires constituant une unité morphologique peut être considérable ( $> 1000$ ) (cf figure 40).

b) Examen de la suspension au microscope électronique à transmission

Il convient à ce stade de l'étude de vérifier s'il existe une similitude entre la forme et la dimension des agrégats d'un matériau en place et ayant subi toutes les phases du retrait et ce que nous observons au microscope électronique à transmission sur une suspension d'argile très diluée.

La photo 17 est très révélatrice à cet égard, en ce qui concerne la dimension des agrégats : aucun phénomène de division n'affecte les unités morphologiques qui conservent leurs dimensions. Il ne semble pas non plus qu'une division ait affecté la particule suivant son épaisseur.

On est donc amené à conclure que l'opération de dispersion ne divise pas les agrégats et que, par conséquent, l'unité morphologique qui intervient dans l'organisation du matériau est la même, quelle que soit la teneur en eau présente dans l'échantillon ou encore quel que soit l'état de ce matériau.





Photo 17 - Echantillon d'illite : taille et morphologie des agrégats à partir d'une suspension d'argile dispersée ; microscope à transmission x 15000 \*

\* Cliché A. FORNEZ - Centre de Recherches sur les Organisations cristallines imparfaites 45000 Orléans La Source

5° Description de l'évolution de l'organisation  
du matériau au cours du retrait

a) Etat d'organisation du matériau consécutif  
à la préparation des échantillons

Dans le cas de l'illite, comme pour les autres argiles, la première opération à avoir été effectuée sur le matériau consiste en une dispersion. Ainsi, que nous venons de le voir, celle-ci sépare, sans les diviser, les agrégats repérés sur le matériau ayant subi toutes les phases du retrait.

Ce sont donc ces agrégats qui interviendront au cours du retrait comme unités morphologiques, ils présentent les quelques particularités suivantes :

- leur forme est variable (généralement allure d'un disque plus épais dans la partie centrale),
- leur taille est variable,
- ils sont constitués par un grand nombre de particules primaires associées bord-bord et face-face dont nous présentons le schéma (figure 40).

Etant donné cette architecture, ces agrégats possèdent une certaine porosité interne que nous connaissons mal. Nous savons seulement que celle-ci est accessible à l'azote lors des mesures effectuées en utilisant la technique du BET. Toutefois, étant donné la taille des molécules d'eau (3 Å environ), nous ne savons pas si ce liquide occupe tout ou partie de l'espace poral.

Enfin, signalons que l'opération de dispersion ne séparant pas les particules primaires associées bord à bord ou face à face au sein d'un agrégat, l'accessibilité aux sites externes de ces particules primaires pour l'eau doit être limitée. Il semble donc que par suite de la présence du potassium et d'un déficit important de charge interne aux feuillets, l'attraction entre deux particules primaires soit supérieure à l'énergie que nous mettons en jeu lors de l'opération de dispersion.

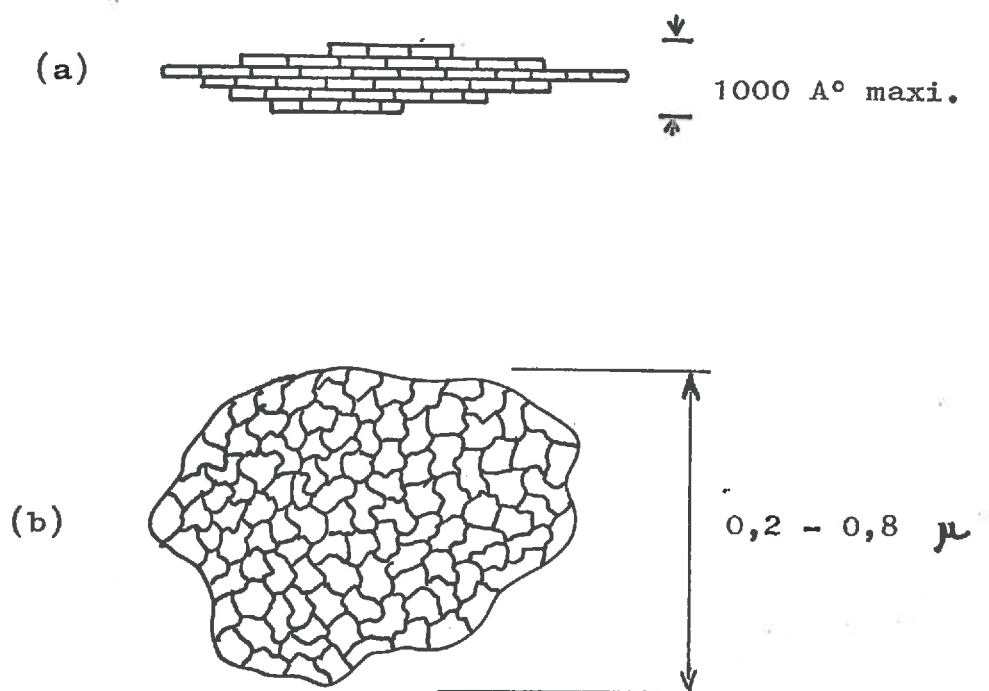


Fig. 40 - Représentation schématique d'un agrégat d'illite

(a) vue en coupe

(b) vue de dessus



Après avoir réalisé la dispersion et la séparation des agrégats, nous avons amené la suspension à pH 6,5 et floclé l'argile en ajoutant une solution de  $\text{CaCl}_2$ . Pour l'illite, la floculation se produit rapidement (moins de 1 heure). Nous pouvons en déduire qu'il se manifeste entre agrégats une attraction importante qui s'agence très probablement suivant le type bord-face (figure 41). D'ailleurs même après centrifugations, lavages à l'eau distillée et avant homogénéisation, l'étude de l'orientation effectuée à partir des rayons X ne permet pas de noter une quelconque orientation ; l'organisation à ce stade reste effectivement isotrope.

Après homogénéisation, nous avons alors rempli les anneaux de Richards, afin d'appliquer comme à l'accoutumé des contraintes croissantes.

#### b) Evolution de l'organisation

A pF 1, la teneur en eau est faible, beaucoup plus faible que pour les autres argiles. Cela vient en partie du fait que la formule structurale de l'illite possède une masse particulièrement élevée, ce qui augmente d'autant la densité réelle. Mais celle-ci ne suffit pas à expliquer tout le comportement de cette argile ; aussi faut-il mettre en cause également la taille des particules et probablement leur architecture.

Ainsi nous pouvons noter qu'entre pF 1 et pF 2, le système poral de l'illite évolue peu, car la contrainte appliquée au matériau est insuffisante pour éliminer de l'eau en quantité importante. Ces résultats vont de pair avec l'existence d'un retrait assez faible et d'une orientation nulle constatée à l'aide des rayons X. C'est pourquoi nous interprétons cette phase du retrait comme étant le terme ultime d'une organisation du type isotrope, car dès que l'on passe à pF 2,5, le matériau perd de l'eau en plus grande quantité et tend à s'orienter.

Il est clair cependant que pour comprendre ce comportement, il serait nécessaire de connaître le mode d'association initial entre les unités morphologiques. VAN OLPHEN (1963) propose à ce sujet un certain nombre de modes d'associations théoriques ; compte

.../...

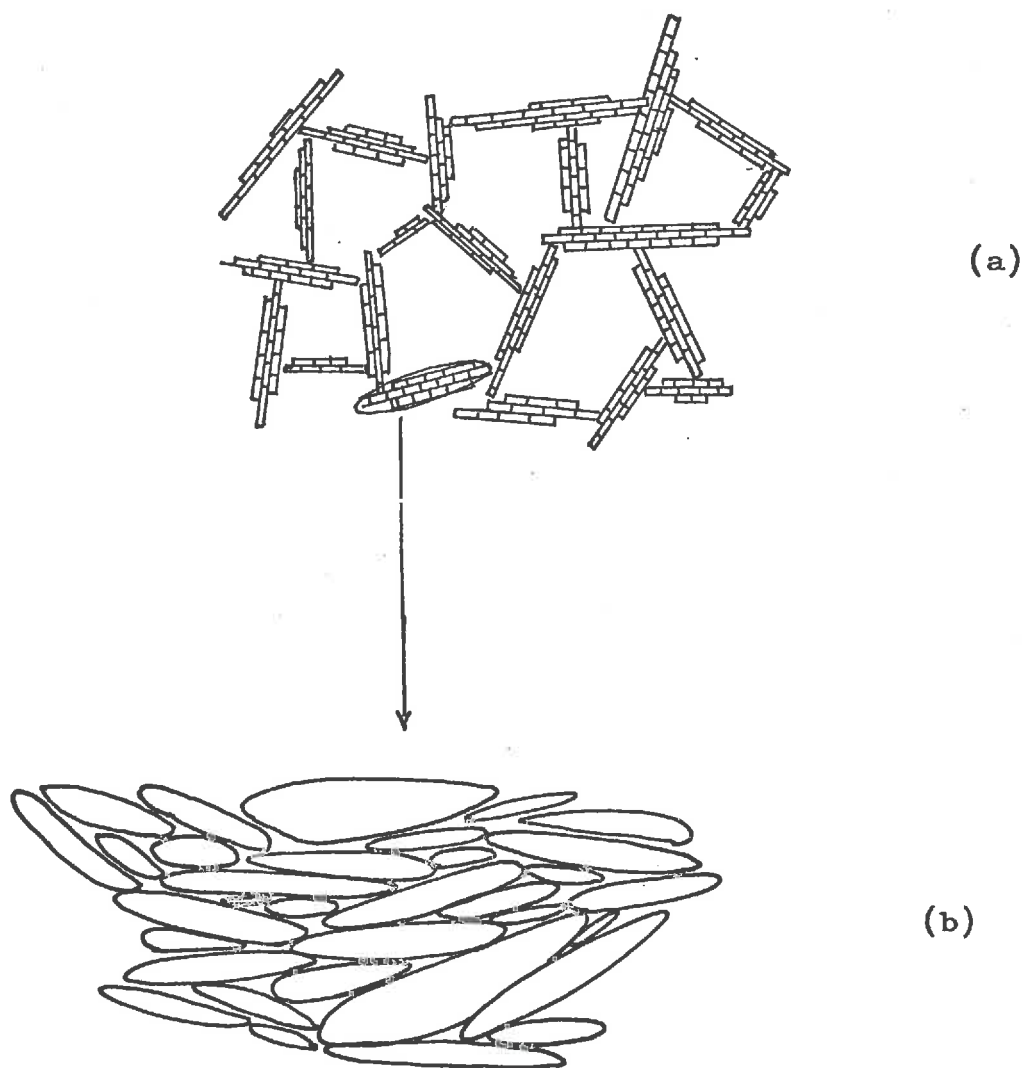


Fig. 41 - Organisation des unités morphologiques dans l'illite.

- (a) - association face-face et bord-bord, agrégé-floculé correspondant à une organisation tridimensionnelle isotrope et continue.
- (b) - association des unités morphologiques après orientation.

tenu de la nomenclature proposée et de la forme des agrégats, nous pouvons envisager ici une association du type face-face, bord-bord, agrégé-floculé (cf figure 41 a).

Mais pour les fortes teneurs en eau marquées par une absence de cohésion, ce type d'organisation ne formerait pas un réseau continu ; on aurait donc affaire à une sorte d'architecture tridimensionnelle limitée.

En revanche, pour une teneur en eau voisine de 80 %, l'architecture tridimensionnelle devient continue et se trouve ainsi à l'origine de l'apparition d'une certaine rigidité (figure 41 a).

Au delà de 80 % d'eau, pour des raisons qui sont vraisemblablement de nature stérique, le système ainsi constitué s'effondre et s'oriente (cf figure 41 b).

A partir de là, une nouvelle organisation du matériau se crée. Celle-ci, qui apparaît fort bien à la limite de retrait, doit être envisagée à plusieurs niveaux :

- entre les unités morphologiques
- au niveau de chaque lit ( $10 \mu$  environ),
- au niveau des écailles (1 mm d'épaisseur environ)

A ce stade de l'étude, il apparaît nécessaire de donner une explication concernant l'existence de cette structure d'un type particulier pour l'échantillon d'illite.

### c) Cénèse de l'organisation concentrique

Rappelons les conditions dans lesquelles nous avons amené l'argile à dessiccation ; aux fortes teneurs en eau, nous utilisons l'appareil de Richards ; on soumet le pâton d'argile à une pression pneumatique isotrope, le drainage étant assuré par une plaque poreuse et on attend que l'équilibre soit établi. Un temps de mise à l'équilibre pendant lequel la teneur en eau est nécessairement plus faible sur les faces externes qu'à l'intérieur du pâton ou au contact de la plaque poreuse. C'est la raison pour laquelle l'orientation des unités morphologiques affecte d'abord l'extérieur, puis

.../...

l'intérieur du pâton et se fait parallèlement aux faces externes.

Cela étant, il est peu probable que cette explication soit suffisante pour expliquer le comportement de l'illite et il faut tenir compte d'un certain nombre de caractéristiques du matériau que nous avons notées et parmi lesquelles nous citerons :

- une granulométrie étalée avec une anisométrie voisine de 1 à 10,
- des unités morphologiques de forme variable,
- des unités peu déformables et qui possèdent très probablement une certaine élasticité.

Ajoutons aussi que dès  $p^1$ , la teneur en eau du matériau étant peu élevée, le contact solide-solide est important. Ainsi le passage d'une organisation isotrope à une organisation anisotrope mettant en oeuvre des unités morphologiques semi-rigides, emboîtées les unes dans les autres, peut provoquer une sorte de blocage du système et constituer une unité séparée : le lit ; plusieurs lits constituent à leur tour une écaille.

Ceci dit, il convient maintenant d'examiner une des conséquences de ce type d'organisation du matériau à la limite de retrait, c'est à dire le problème de la porosité de l'échantillon.

#### d) Examen de la porosité à la limite de retrait

Nous avons vu que l'assemblage des unités morphologiques semblait très compact. Les études de la porosité, qui ont été effectuées par ailleurs sur des illites de nature différentes, confirment que la porosité texturale est effectivement toujours assez faible et qu'elle ne paraît pas dépasser 38 à 39 % ; DIAMOND (1971), SILLS, AYLMOORE et QUIRK (1973). Ces études confirment donc notre description du système poral au niveau élémentaire.

En revanche, nous avons vu qu'à la limite de retrait, la porosité globale de l'échantillon était élevée (45 %). Ceci nous suggère qu'une bonne partie de celle-ci est d'origine fissurale.

.../...

Enfin, en ce qui concerne l'occupation de cette porosité par les fluides et en particulier par de l'eau, signalons qu'à pF 4,8, c'est à dire à la limite de retrait, une bonne partie de la macro porosité est nécessairement vidée puisque le matériau ne contient plus que 29 % d'eau. En revanche, la porosité texturale, c'est à dire celle qui est contenue à l'intérieur et entre les unités morphologiques, est encore saturée.

Une partie de cette eau est d'ailleurs éliminée entre pF 4,4 et pF 4,8 et celle-ci provoque une modification importante des propriétés physiques. Ce comportement lié à la disparition d'une eau qui pourrait être en majorité située entre les lits, est intéressante à considérer, si l'on veut aborder les aspects physiques et mécaniques du comportement de l'argile.

\*  
\* \*

D - HORIZON B -1° Rappels sur les propriétés générales du matériau utilisé

L'argile "Horizon B" a été retenue dans le but d'étudier le comportement d'un matériau, dont la nature minéralogique complexe est caractéristique des sols des régions tempérées et plus particulièrement des sols limoneux du Bassin de Paris.

Celle-ci est en effet, constituée d'un mélange :

- . d'argile gonflante,
- . d'illite,
- . de kaolinite,
- . et d'oxydes et d'hydroxydes de fer.

D'un autre côté, le mélange est composé de particules, dont la granulométrie paraît assez étendue ; enfin, la nature des diverses unités morphologiques est variable, puisque nous observons des cristallites hexagonaux de kaolinite à côté d'agrégats plus ou moins exfoliés de minéraux gonflants et d'illite.

La nature des phyllites expansibles et leur proportion confèrent à l'argile une réactivité importante : la capacité d'échange est en effet de 53 m.é.q. pour 100 g, la surface externe de 118 m<sup>2</sup> et la surface interne de 249 m<sup>2</sup>.

2° Mesures globales caractérisant le retrait

Les résultats relatifs à la porosité d'un matériau ne peuvent être établis que si on connaît la densité réelle du matériau. Or, l'argile H.B. étant un mélange de plusieurs espèces minéralogiques, il n'est pas possible de calculer celle-ci à partir des formules structurales. Nous avons donc adopté une méthode indirecte qui peut être utilisée lorsque l'échantillon est saturé, c'est à dire à des teneurs en eau importantes.

Quand un matériau en effet est saturé, on peut connaître aisément le volume occupé par le solide ; il suffit pour cela de

retrancher du volume total pour 100 g, le volume occupé par l'eau, soit :

$$V_T - V_{H_2O} = V_S (100 \text{ g})$$

$$\text{d'où } d \text{ réelle} = \frac{1}{V_S} \times 100$$

A des teneurs en eau importantes et en répétant les mesures, il est possible d'obtenir une très bonne valeur statistique de la densité réelle ; dans le cas de l'argile H.B., cela donne :  $d_r = 2,81$ .

Le tableau XIV rassemble les résultats relatifs aux mesures globales.

a) Relation volume-teneur en eau (figure 42)

Dans la gamme des teneurs en eau comprises entre 20% et 60 %, les points reportés sur le graphique sont parfaitement alignés et parallèles à la première bissectrice. Or, le matériau étant saturé en eau ( $V_{\text{total}} - V_{\text{eau}} = \text{Volume de solide}$ ), cela signifie que la diminution du volume ne résulte que de l'élimination d'une quantité d'eau équivalente.

En revanche, en deçà de 60 %, les points se séparent de cette dernière droite ; le matériau n'est donc plus saturé et une certaine quantité d'air occupe la porosité. Ce type de comportement apparaît surtout en deçà de 22 % d'eau, teneur à partir de laquelle nous observons une variation de volume quasi-nulle jusqu'à complète dessiccation.

L'échantillon d'argile H.B. possède donc une limite de retrait, celle-ci apparaît à une teneur en eau voisine de 20 %.

b) Relation contrainte - teneur en eau (figure 43)

Nous avons appliqué au gâteau d'argile des énergies croissantes, ce qui provoque une expulsion d'eau en même temps qu'une diminution de volume.



Tableau XIV - Mesures globales caractérisant le retrait de l'argile HB - Les résultats ont été calculés pour une densité réelle de 2,81 (35,6 cm<sup>3</sup> pour 100 g)

Échantillon	Volume total pour 100 g de solide	Volume d'eau pour 100 g de solide	Volume d'air pour 100 g de solide	Porosité totale en pour cent	Porosité occupée par l'air (% volume total)	Quantité d'eau extraite entre 2 équilibres successifs
11e	245,0	207	2,4	85,5	0,9	
	181,0	145	0,4	80,3	0,2	
5	168,6	133	0,4	19,1	0,2	12
0	159	123	0,4	77,6	0,3	10
5	143	106	1,4	75,1	0,9	17
	117,2	82	0	70,0	0	24
5	99,4	62,5	1,3	64,2	1,3	19,5
	98,4	58,3	4,5	63,8	4,6	4,2
2	95,1	56,6	2,9	62,6	3,0	1,7
4	90,0	47,0	7,4	60,4	8,2	9,6
8	73,5	26,7	11,2	51,6	15,2	20,3
4	63,2	21,8	5,8	43,7	9,2	4,9
75	64,0	18,2	10,2	44,4	15,9	3,6
2	63,5	4,4	23,5	43,9	37,0	13,8
5	60,7	2,8	22,3	41,4	36,7	1,6

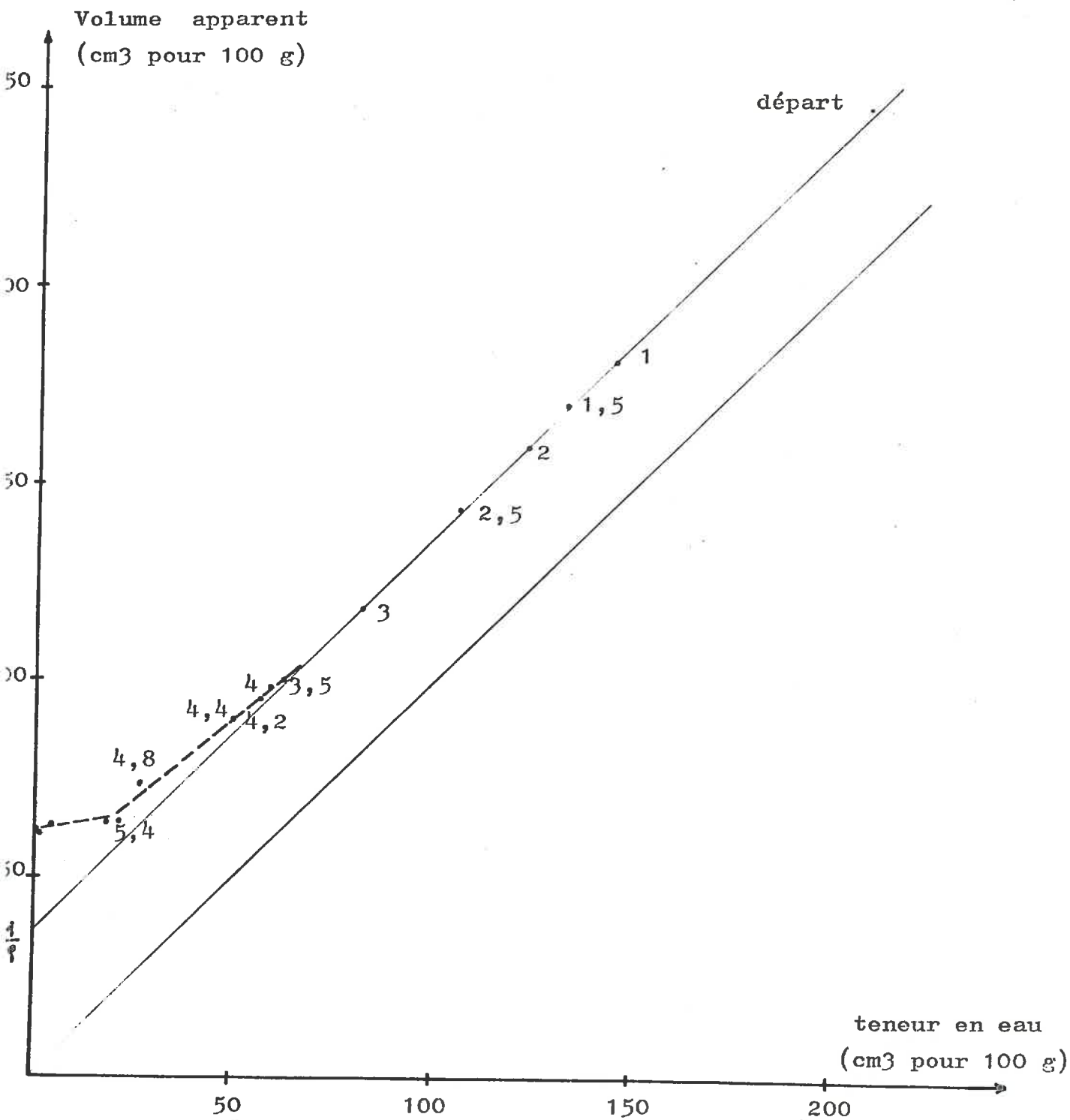


Fig. 42 - Courbe de retrait de l'argile H.B.

A pF 1, la teneur en eau du matériau était de 145 %. Compte tenu de la constitution minéralogique et en particulier du fait que le matériau contient 30 % de minéraux à gonflement interfeuillet cette teneur en eau est faible et se différencie beaucoup des teneurs en eau que nous aurions obtenues à partir d'un mélange artificiel renfermant une proportion identique des trois argiles monominérales décrites précédemment et où chaque argile conserverait ses propriétés d'hydratation spécifique.

Nous avons ensuite soumis l'argile à des contraintes de plus en plus élevées. Comme pour les autres argiles, nous observons des pertes importantes dans la gamme des pF située entre 1 et 3,5 ; mais encore une fois, le départ d'eau est plus élevé au-delà de pF 2 et il se poursuit d'ailleurs avec la même intensité jusqu'à pF 3,5. Nous retrouvons là, un type de comportement que nous avons étudié précédemment, caractérisé en particulier par l'existence de domaines de grande sensibilité.

En poursuivant l'examen de la courbe, nous constatons qu'entre pF 3,5 et 4,2, le départ d'eau devient plus faible ; puis, de pF 4,2 à pF 4,8 l'expulsion d'eau redevient importante. Plus loin, entre pF 4,8 et pF 5,75, l'argile est de nouveau peu sensible à la contrainte. Mais si nous poursuivons l'étude, nous constatons qu'entre pF 5,75 et 6,20, le départ d'eau redevient notable.

Ainsi, pour l'argile H.B. comme dans le cas des autres matériaux argileux, nous observons des départs d'eau discontinus en fonction de la contrainte appliquée au système poreux. En outre, nous pouvons constater qu'entre pF 2,0 et 3,5, le phénomène est étalé et reflète probablement en partie le comportement des différentes argiles composant le mélange.

Examinons maintenant si ces différents départs d'eau peuvent être reliés à l'évolution des paramètres du système poreux.

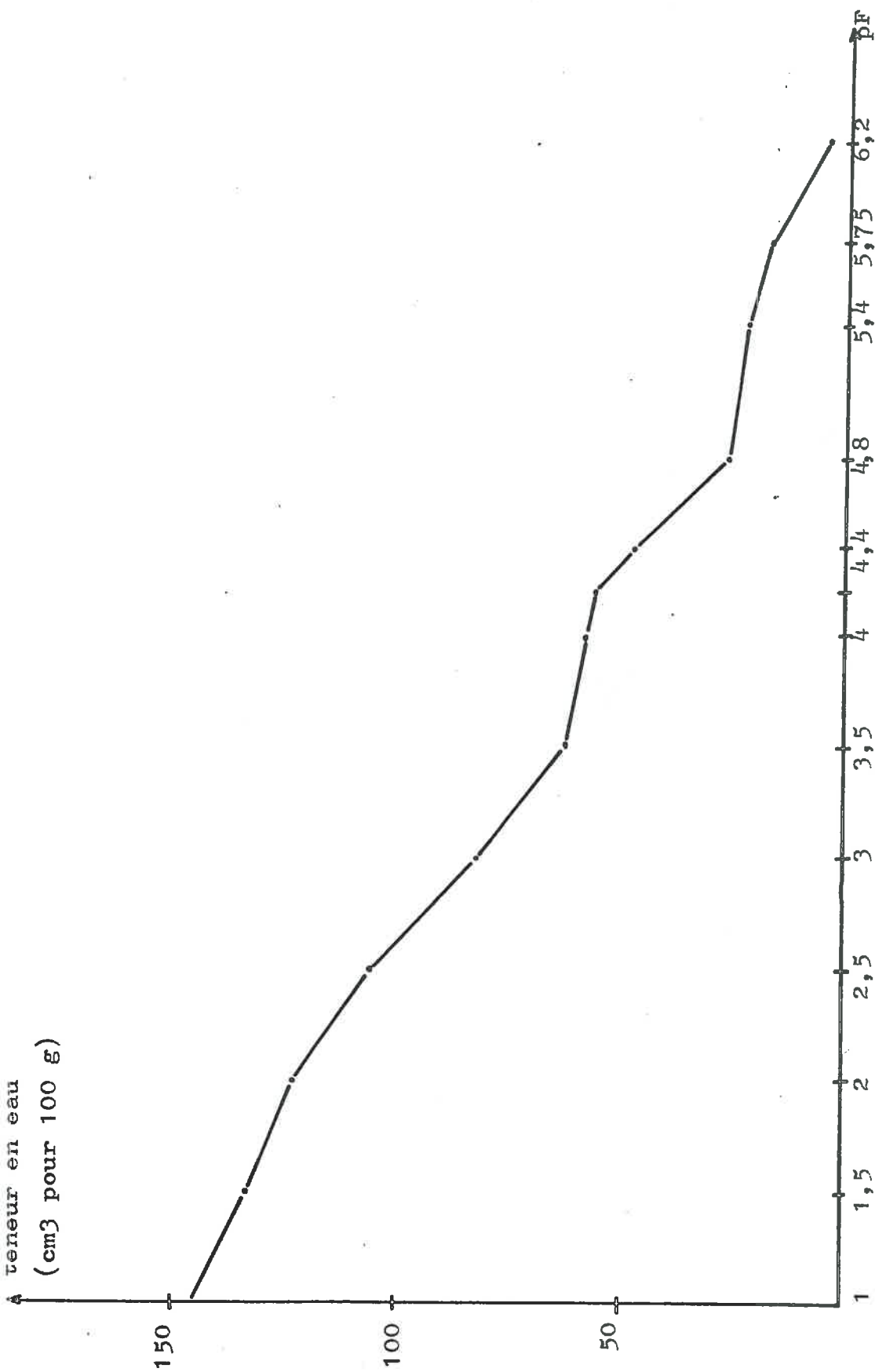


Fig. 43 - Relation contrainte teneur en eau de l'argile H.B.

c) Evolution des paramètres caractérisant le retrait  
(tableau XV)

La teneur en eau de la pâte homogénéisée étant relativement faible (207 %), le retrait global et par voie de conséquence, les paramètres du retrait évolueront peu, comparés aux matériaux argileux étudiés précédemment.

En examinant les données relatives à  $e/e_0$  et  $d/d_0$ , nous constatons là encore un retrait global affectant principalement l'épaisseur du pâton, et qui se fait donc d'une manière anisotrope.

Toutefois, si nous établissons la courbe  $e/e_0/d/d_0$  en fonction de la teneur en eau (cf figure 44), le retrait apparaît dans une première phase comme étant de caractère isotrope. (jusqu'à pF 2) Ensuite, entre pF 2 et 2,5, ce type de comportement tend à disparaître et entre 2,5 et 3, le retrait prend nettement un caractère anisotrope.

Dans le cas de la première phase (pF 1 - pF 2), nous pouvons envisager l'hypothèse selon laquelle le retrait est d'abord provoqué par un rapprochement des agrégats sans orientation. Par la suite, une orientation se produit, qui est alors accompagnée d'une expulsion d'eau relativement importante.

Enfin, si nous examinons les valeurs  $e/e_0/d/d_0$  dans le domaine des pF supérieurs à 3,0, tout se passe comme si le retrait était isotrope. En réalité, cela provient du fait que le pâton subit un retrait de faible amplitude et que celui-ci affecte préférentiellement la partie centrale de l'échantillon. Nos mesures réalisées au pied à coulisse ne peuvent donc pas rendre compte de l'évolution du volume située entre pF 3 et pF 4,3.

Tableau XV - Paramètres du volume de pâtons de l'argile HB

pF	Teneur en eau	$e/e_0$	$d/d_0$	$e/e_0/d/d_0$
1	145	0,81	0,93	0,86
1,5	133	0,79	0,93	0,85
2	123	0,75	0,92	0,82
2,5	106	0,67	0,90	0,75
3	82	0,46	0,89	0,51
3,5	63	0,42	0,86	0,47
4	58	0,41	0,85	0,47
4,2	57	0,41	0,84	0,48
4,4	47	0,42	0,84	0,50
4,8	27	0,40	0,83	0,48

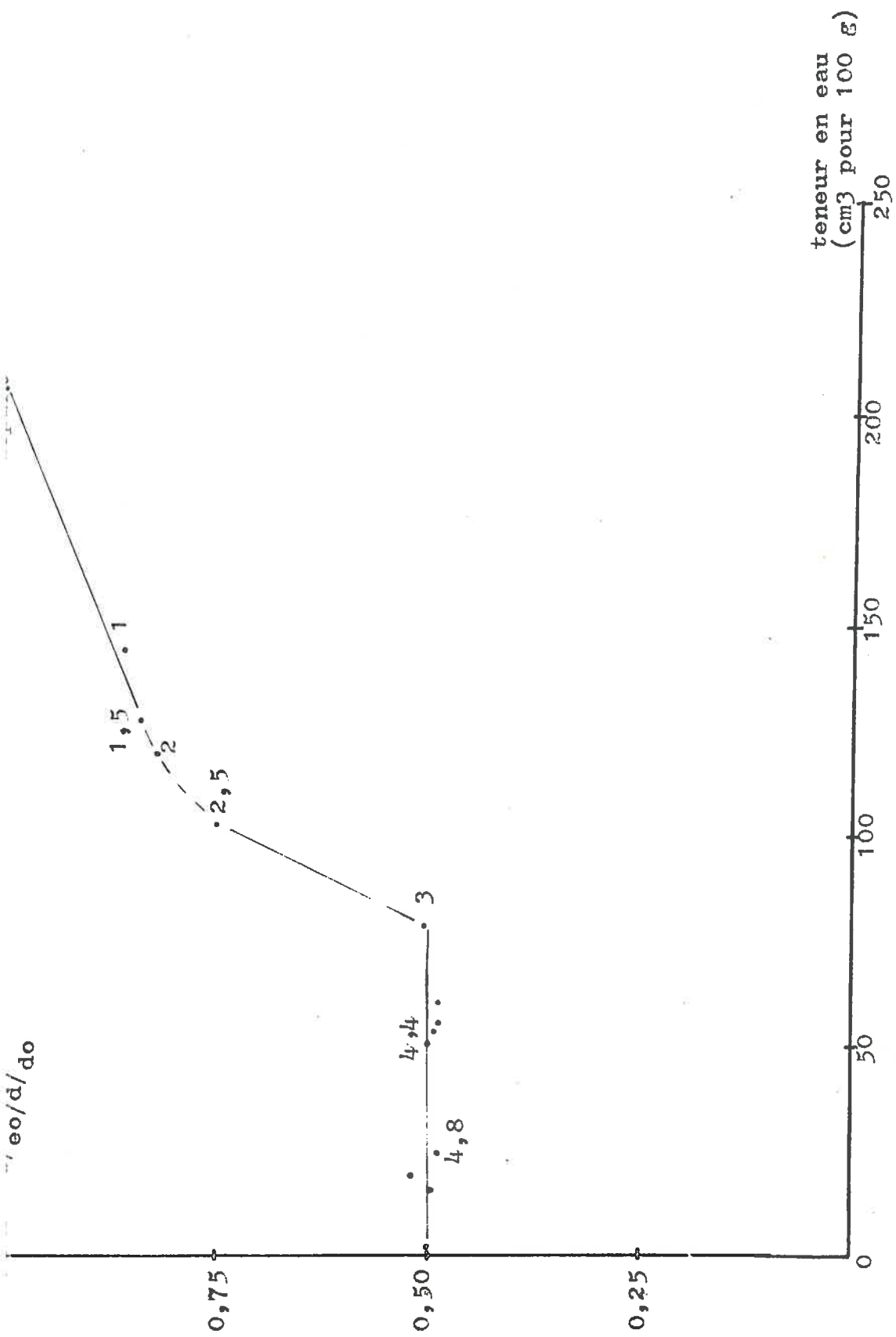


Fig. 44 - Anisotropie du retrait de l'argile H.B. en fonction de la teneur en eau.



### 3° Etude de l'organisation interne à l'aide de la diffraction des rayons X

#### Conditions de l'expérience

L'argile H.B. est un matériau complexe, qui contient une quantité notable d'oxydes et d'hydroxydes de fer. Ceux-ci, qui participent à l'enrobage des particules, atténuent en grande partie la diffraction des rayons X. Or, l'étude ayant été effectuée sur des matériaux non déferrifiés, nous n'avons pu suivre l'évolution de l'indice d'orientation comme dans les cas précédents. Au demeurant, indiquons qu'il a été parfaitement possible d'apprécier d'une manière qualitative le passage d'un certain état d'isotropie à un état d'anisotropie dans l'orientation des particules.

#### Résultats obtenus avec la méthode

Les spectres réalisés sur la pâte argileuse avant homogénéisation et remplissage des anneaux ne révèlent aucune orientation. Nous sommes donc conduits à envisager une association des unités morphologiques de type bord-face.

Nous avons ensuite soumis les pâtons à des contraintes de plus en plus élevées.

Dans la gamme de pF compris entre 1 et 2,5, les spectres ne mettent en évidence aucune orientation. Ceci confirme tout à fait les résultats concernant l'étude des paramètres du retrait, et à partir desquels nous avons été amenés à envisager une sorte de rapprochement des agrégats conduisant à un retrait limité et quasi isotrope.

Dans une seconde phase, à partir de pF 3, l'argile s'oriente et cette orientation apparaît brutalement sur les diagrammes. Il semble d'ailleurs que cette orientation acquise à pF 3, conserve ses caractéristiques à des valeurs du pF supérieures et qu'en particulier elle ne s'accroît pas de manière sensible pour pouvoir être perçue lors d'un examen visuel des spectres X.

Ce type de comportement, retrait isotrope suivi d'une orientation brutale mais limitée, ressemble tout à fait à ce que nous avons observé pour l'illite. Ceci n'est pas étonnant, car d'une part le matériau contient des argiles appartenant à cette famille, et d'autre part, l'hétérogénéité du matériau qui est grande, provoque un arrangement du même type que dans ce matériau.

Il reste à voir toutefois, si dans l'argile H.B. on arrive à retrouver une organisation interne similaire à ce que nous avons observé dans l'illite.

#### 4° Etude par les méthodes d'observation directe

Les observations à la loupe binoculaire ont été effectuées sur des échantillons ayant subi toutes les phases du retrait. L'examen d'un pâton fracturé sur la tranche révèle l'existence d'un réseau abondant de fissures plus ou moins concentriques (photo 18 a et b). Ces fissures sont fines et ne débouchent pas sur l'extérieur, car une pellicule externe très fine joue le rôle de film semi perméable et assure une certaine cohésion au matériau. De plus, indiquons qu'il s'agit souvent d'une porosité fissurale fermée (cf photo 18 b).

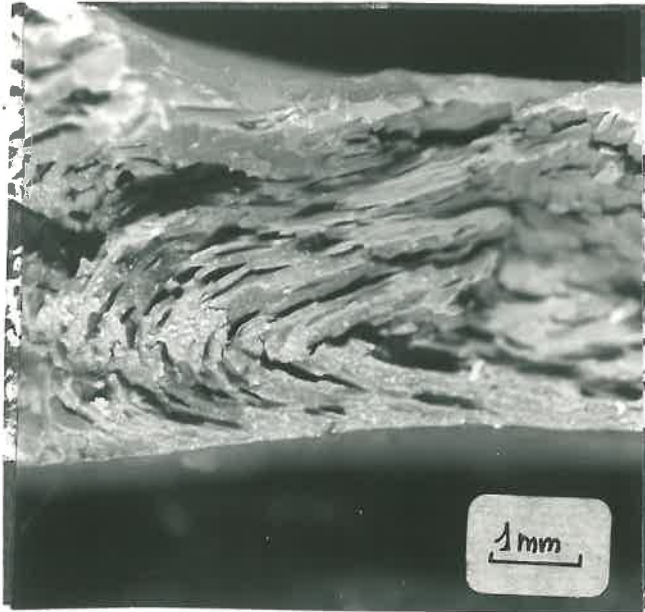
Lorsque nous fracturons ensuite le pâton pour tenter d'extraire quelques écailles concentriques, on constate que celles-ci apparaissent très fines et qu'elles mesurent souvent moins de 500  $\mu$  d'épaisseur sur quelques mm de diamètre.

Comme dans le cas de l'illite, l'organisation en "pelure d'oignon" accroît la porosité globale de l'échantillon, en sorte que celle-ci est composée d'une porosité fissurale et d'une porosité texturale. Cette dernière porosité ménagée entre les agrégats est d'ailleurs accessible au microscope électronique à balayage.

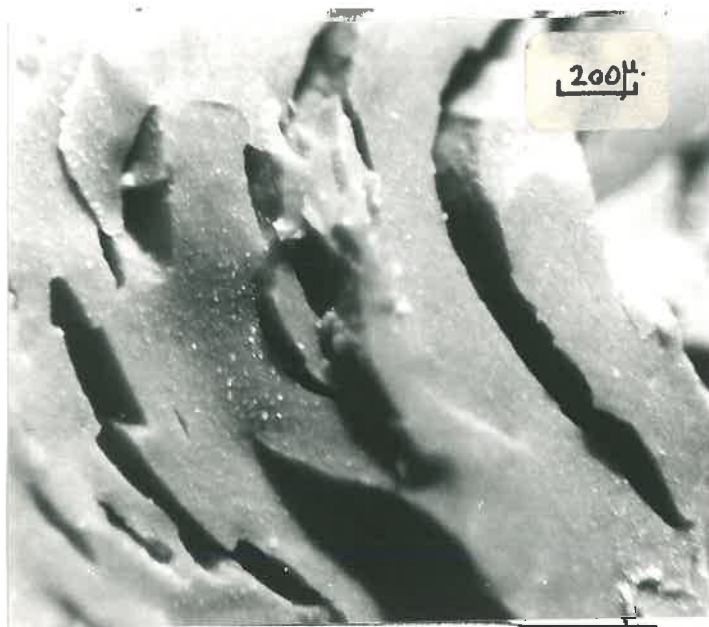
Ainsi la photo 19 réalisée à un grossissement x 5000 sur la tranche du gâteau révèle l'orientation globale d'une écaille. Celle-ci apparaît nettement ; mais comme dans l'illite, on note l'existence d'un certain nombre de "discontinuités" dans le sens de l'orientation. Ces bandes ou lits mesurent 1 à 2  $\mu$  d'épaisseur et sont de dimension notablement inférieure à ce que nous observions

.../...

(a)



(b)



Photos 48 : Echantillon d'argile H.B. ; observation de la tranche du p $\hat{a}$ ton.

(a) - vue g $\acute{e}$ n $\acute{e}$ r $\acute{a}$ le - loupe binoculaire x 12.

(b) - mise en  $\acute{e}$ vidence d'une porosit $\acute{e}$  fissurale ferm $\acute{e}$ e - Loupe binoculaire x 50.

pour l'illite (5 à 10  $\mu$ ). En outre, elles présentent sans aucun doute des zones de décollement qui jouent préférentiellement lors du retrait.

L'étude d'une bande dans le détail (photo 20) révèle que l'assemblage est très compact et qu'il est très difficile dans ces conditions de séparer les unités morphologiques. Néanmoins, leur taille peut être évaluée entre 0,3 et 1,5  $\mu$ , avec une dimension moyenne qui avoisine 0,6  $\mu$ . De plus, étant donné leur épaisseur (parfois  $> 1000 \text{ \AA}$ ), les unités morphologiques des minéraux 2/1 possèdent de toute évidence une constitution comparable à celles de l'illite (B.B.-T.F.).

Ajoutons toutefois que les mêmes unités sont plus déformées que dans l'illite, et que nous ne retrouvons pas la morphologie rubannée si caractéristique de la montmorillonite.

En dernière analyse, c'est donc bien de l'illite que se rapproche le plus nettement le comportement de l'argile H.B.

##### 5° Histoire du retrait de l'argile Horizon B

Le matériau dont nous allons retracer les différentes phases de l'organisation est formé par un mélange de plusieurs argiles, auquel s'ajoutent des oxydes et hydroxydes de fer amorphes et un peu de quartz. Le mécanisme du retrait propre à ce matériau dépendra donc non seulement des propriétés de chaque fraction minéralogique, mais aussi des propriétés d'un ensemble de nature complexe où les différents composants impriment au matériau un comportement particulier que nous essaierons de déceler.

##### a) Etat d'organisation consécutif à la préparation des échantillons

Dispersion : Comme pour les autres matériaux, nous avons au départ provoqué la dispersion de la fraction granulométrique  $< 2 \mu$  et nous allons d'abord comparer les propriétés de la suspension à celles des unités morphologiques contenues dans les pâtons d'argile ayant subi toutes les phases du retrait. Ce type d'étude

.../...



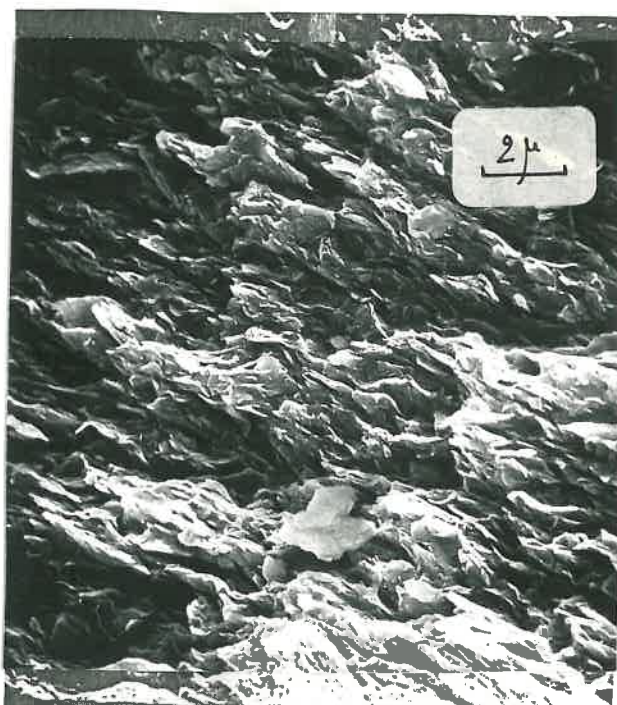


Photo 19 - Echantillon d'argile H.B. Observation de la tranche du p $\hat{a}$ ton mettant en évidence un litage fin (bandes de 1 à 2  $\mu$  d'épaisseur) - MEB x 5500 -



Photo 20 - Echantillon d'argile H.B. Observation de la tranche du p $\hat{a}$ ton (faisceau d'électrons parallèle au plan de référence) Morphologie et déformabilité des unités morphologiques - MEB x 22000 -

va nous permettre de vérifier quel est l'effet de la dispersion sur les unités morphologiques constituant les matériaux desséchés.

Les mesures grossières, que nous avons réalisées sur la suspension d'argile sodique dispersée, indiquent que plus de 70 % des particules ont une taille  $\leq 1 \mu$ . Compte tenu de ce que nous avons vérifié sur le matériau séché lors de l'étude au microscope électronique à balayage, nous séparons donc des particules dont la dimension est du même ordre de grandeur que celles observées sur le matériau séché. Ainsi, l'opération de dispersion telle que nous l'avons pratiquée, se limite à la séparation des agrégats et cristallites, mais n'a que peu d'effets sur les agrégats caractéristiques de l'illite et des minéraux gonflants, en ce sens qu'elle ne les divise pas.

Un tel comportement est intéressant à noter, car contrairement à ce que nous avons vu dans le cas de la montmorillonite, l'opération de dispersion s'adressant à d'autres minéraux expansibles, telles les smectites de transformation et les vermiculites issues des illites, a des effets beaucoup plus limités. Ceci n'est pas très étonnant, puisque les agrégats de ces minéraux, même lorsqu'ils sont exfoliés, possèdent une organisation similaire à celle de l'illite. Mais il ne faut pas oublier que nous ne connaissons pas le degré d'interstratification de ces ensembles et que nous sommes incapables de donner une répartition des différents minéraux au sein des agrégats.

On peut d'ailleurs attribuer un tel comportement à l'existence d'une localisation tétraédrique du déficit de charge des vermiculites et smectites de transformation et d'un autre côté à la valeur relativement élevée du déficit global par rapport à celui de la montmorillonite vraie.

Cela étant, il faut ajouter que nous pourrions faire intervenir à ce niveau un certain nombre de considérations relatives au mode d'empilement des feuillets eux-mêmes dans les minéraux gonflants et à l'individualisation d'un réseau tridimensionnel.

Notons que ce type de structure existerait dans certaines conditions pour les minéraux 2/1 de type beidellite, avec le cation Ca en particulier ; en revanche, pour les montmorillonites, le réseau serait toujours bidimensionnel (structure turbostratique, MERING 1962).

De toute manière, les conséquences qui sont à tirer de ces différentes remarques sont importantes, car comme pour l'illite l'architecture face-face - bord-bord - agrégé-floculé ne peut limiter des cavités de grande dimension, il devient aisé de prévoir qu'aux faibles contraintes, l'hydratation de l'argile est limitée. De ce fait, le comportement de l'argile tend à se rapprocher beaucoup plus de celui de l'illite que du comportement caractéristique de la montmorillonite.

Floculation : La dispersion de l'argile se faisant à pH 9,0, nous avons ramené le pH à 6,5 par addition d'HCl, puis nous avons ajouté une quantité suffisante de  $\text{CaCl}_2$  de manière à saturer l'argile. La floculation a été complète et rapide ; moins de 1 heure ayant suffi pour obtenir un surnageant très clair. Ainsi la floculation a les caractéristiques de celle que nous avons observée dans l'illite et la montmorillonite. Elle ne présente d'ailleurs aucune orientation préférentielle décelable aux rayons X et conduit à considérer qu'effectivement les unités morphologiques sont associées bord-face.

#### b) Evolution de l'organisation

Comme dans le cas des autres argiles, la première contrainte appliquée a été  $pF = 1$ . A cette contrainte, l'argile n'est pas orientée préférentiellement, le retrait est donc de caractère isotrope et la teneur en eau limitée. Ainsi, nous pouvons confirmer que la dimension des unités morphologiques et leur mode d'association (bord-face) assurent au matériau une teneur en eau limitée malgré la présence d'argiles à caractère gonflant.

Ce qui paraît important, ce n'est donc pas la présence de phyllites gonflantes ayant des cations hydratés en position interne.



foliaire, mais plutôt un certain mode d'association des particules primaires, qui peut alors, soit aboutir à des unités morphologiques de grande dimension (cas des rubans - liaisons bord-bord), soit conduire à des unités morphologiques de dimension limitée (cas des agrégats - liaisons bord-bord et face-face).

De ce fait, la dimension des unités morphologiques étant fixée au moment de la floculation, nous pouvons envisager l'existence comme pour l'illite (cf 2ème partie, C) de :

- une architecture tridimensionnelle discontinue aux très fortes teneurs en eau ;
- une architecture tridimensionnelle continue et stable qui apparaît en même temps qu'une certaine rigidité (pF allant de 1 à 2)
- enfin, en deçà d'une certaine teneur en eau, l'organisation isotrope s'effondre avec corrélativement orientation des particules.

De même que pour l'illite, l'orientation est rapide et en même temps limitée.

Aussi, les arguments que nous avons avancés pour expliquer la présence d'une structure type "pelure d'oignon" sont les mêmes que dans le cas de l'illite (cf 2ème partie, C).

Enfin, signalons que dans l'horizon B, la phase du retrait comprise entre pF 4,4 et pF 4,8 provoque le départ d'une quantité d'eau importante. Nous avons de bonnes raisons de penser que cette eau participe à l'hydratation des cations saturant la capacité d'échange.

En définitive, nous voyons que le comportement de l'argile H.B., qui est une argile typique des sols du Bassin de Paris, ne peut être expliqué en considérant la somme des comportements éventuels des argiles du mélange, à savoir celui correspondant aux trois grands types structuraux :

- les minéraux 1/1 (kaolinite)
- les minéraux 2/1 non expansibles (dits "non gonflants")
- les minéraux 2/1 expansibles (dits "gonflants")

Or, ceci résulte très probablement du fait que dans le cas de ces derniers minéraux, la modification de l'équidistance apparente de feuillets n'est pas nécessairement liée au seul type morphologique auquel on se réfère habituellement, c'est à dire à la montmorillonite. Dans ces conditions, comme le problème semble se situer à ce niveau, nous allons aborder l'étude comparée des argiles (IIIème partie) en mettant l'accent sur la morphologie des particules **ainsi** que sur leur mode d'association.

\*  
\* \*  
\*

TROISIEME PARTIE

\* \* \*

ORGANISATION ET COMPORTEMENT DES MATERIAUX ARGILEUX

EN COURS DE DESSICCATION (PHENOMENE DE RETRAIT)

## INTRODUCTION

Nous avons présenté au cours de la deuxième partie de ce travail les résultats obtenus à partir des quatre matériaux choisis, ce qui nous a conduit dans chacun des cas à tracer une esquisse de l'histoire hydrique des quatre argiles en cours de retrait et à mettre ainsi en évidence le rôle joué par les unités morphologiques sur le comportement des systèmes poreux.

Cette troisième partie sera consacrée plus précisément à une discussion plus générale relative aux organisations et aux comportements des divers matériaux :

- dans un premier temps, nous limiterons notre champ d'investigation aux argiles calciques sur lesquelles nous avons expérimenté,

- puis, au cours d'un deuxième temps, dans une partie plus prospective, nous tenterons de nous situer au sein d'un cadre plus général en faisant appel aux diverses conditions rencontrées dans le milieu superficiel.

### A - TYPE D'ORGANISATION ET SON EVOLUTION EN RELATION AVEC LE COMPORTEMENT EXPERIMENTAL DES 4 ARGILES CALCIQUES ETUDIEES

#### I - ETAT D'ORGANISATION DE LA PÂTE ARGILEUSE -

##### 1° Constitution de l'unité morphologique

Pour les 3 argiles monominérales préparées dans les mêmes conditions (dispersion à la sonde à pH 9,0, adjonction de  $\text{CaCl}_2$  à pH 6,5), les unités morphologiques sont dans chacun des cas bien déterminées.

Si l'on considère tout d'abord les grands types phylliteux, on constate que :

- dans la kaolinite, l'unité morphologique est simple puisqu'elle est constituée par le cristallite élémentaire

.../...

- en revanche, dans les minéraux 2/1, celle-ci est une association de particules primaires.

Le premier point, qui apparaît donc ici, réside dans l'inaptitude de la kaolinite, pour les conditions physicochimiques que nous avons fixées, à former des liaisons entre les cristallites. De ce fait, nous voyons déjà à ce niveau de la discussion, une différence essentielle entre la kaolinite et les minéraux argileux 2/1. Cette impossibilité de la kaolinite à s'associer est bien connue, ainsi que cela résulte des données antérieures dues à SCHOFIELD et al (1953-1954) et MICHAELS et BOLGER (1964).

En revanche, la montmorillonite et l'illite sont capables de former des associations complexes dont l'élément de base est une particule primaire composée de 6 à 15 feuillets superposés. Mais, de telles particules peuvent s'assembler de plusieurs manières et notamment :

- B - B dans la montmorillonite
- B - B et F - F dans l'illite

Or, ce type d'assemblage qui, en définitive, conditionne la taille des unités morphologiques, détermine aussi la surface en contact avec la phase liquide située entre les unités morphologiques et permet de ce fait d'expliquer la quantité d'eau présente dans le matériau.

a) En ce qui concerne la montmorillonite, tout d'abord ce type d'association est conforme aux hypothèses formulées par de nombreux auteurs sur des floculats obtenus à faible concentration d'argile calcique. Ceux-ci indiquent que le nombre de feuillets superposés varie de 5 à 15 : BLACKMORE et MILLER (1961), SHAINBER et KEMPER (1966), BANIN et LAHAV (1968), VAN OLPHEM (1973). De plus les auteurs indiquent que la distance  $d(001)$  sur les montmorillonites calciques ne dépasse jamais  $20 \text{ \AA}$ , même à de très fortes teneurs pondérales en eau ( $> 10.000 \%$ ) : MERING (1946), BARSHAD (1953), QUIRK (1968), NORRISH (1954), EMERSON (1962), BANIN et LAHAV (1968).

Ces données, ainsi que celles que nous avons indiquées précédemment nous amènent à formuler 2 conclusions :

.../...

1°) Le nombre de feuillets constituant l'unité morphologique de la montmorillonite (\*) restant constant pendant le retrait, cela signifie qu'il n'existe en pratique ni regroupement, ni dissociation des unités morphologiques au cours de l'évolution du matériau.

2°) La plus grande partie du retrait se déroulant sans modification de l'épaisseur apparente des feuillets, il ne semble pas y avoir de différence sensible entre le comportement de la montmorillonite et celui des autres argiles.

b) En ce qui concerne l'illite, c'est l'association B-B - F-F entre les particules primaires qui conduit à l'unité morphologique caractéristique de ce matériau. Ces données sont conformes aux observations microscopiques effectuées sur des argiles de ce type par O'BRIEN (1971). De plus, nous avons vu au cours de la deuxième partie (cf page 149) qu'il n'y avait pas de division des unités morphologiques ainsi constituées au cours de la dispersion sodique. On peut donc considérer celles-ci comme stables et caractéristiques du minéral dans les conditions que nous avons fixées pour les essais.

## 2° Mode d'assemblage entre les unités morphologiques

L'architecture de l'unité morphologique étant précisée et considérée comme acquise tout au long du retrait du matériau, nous allons examiner maintenant comme se fait l'assemblage entre ces unités dans le cas des différentes argiles.

### a) Organisation isotrope et anisotrope

Nous avons montré au cours de la deuxième partie de ce travail que l'adjonction d'électrolyte ne provoquait pas véritablement de floculation de la kaolinite, mais une sorte de sédimentation. En outre, nous avons noté, d'une part, que l'orientation dans l'échantillon était immédiate et, d'autre part, que la phase initiale rigide n'existait pas. Dans ces conditions, nous sommes conduits à formuler l'hypothèse que, pour la kaolinite, et dans les conditions de l'essai, les interactions B - F sont inexistantes ou de très faible énergie.

(\*) c'est ce que les auteurs anglo saxons appellent "tactoid"

En revanche, dans l'illite et la montmorillonite, l'existence d'une phase de retrait sans orientation perceptible aux rayons X nous amène à penser qu'au cours de cette phase du retrait, l'organisation individualisée repose sur des interactions entre les unités morphologiques de type B - F. Ce fait est d'ailleurs confirmé au moyen du microscope électronique à balayage qui montre, à complète dessiccation, le maintien de liaisons B - F conservées.

L'existence de ces liaisons a d'ailleurs déjà été avancée par de nombreux auteurs, ce qui permettait d'expliquer le défaut d'orientation mis en évidence aux fortes teneurs en eau lors des examens microscopiques. Signalons à ce sujet en particulier les travaux de VAN OLPHEM (1973).

En ce qui concerne l'illite, O. BRIEN (1971) a pu démontrer après congélation et lyophilisation du matériau humide, l'existence d'un réseau tridimensionnel lâche. Aussi, sommes-nous conduits à considérer la présence de liaisons B - F entre les unités morphologiques de la montmorillonite et de l'illite à de fortes teneurs en eau, comme tout à fait plausible.

Cela étant, comme nous n'avons pas obtenu nous même d'observation directe sur les systèmes fortement hydratés d'illite et de montmorillonite, il est impossible d'avoir une idée exacte de l'assemblage et de sa complexité. Toutefois, en raison des résultats d'O. BRIEN sur l'illite et surtout par suite de nos observations sur une kaolinite ferrisée (\*), il semble bien que l'organisation consiste en un assemblage tridimensionnel comprenant 7 à 8 unités et délimitant des sortes de cages. C'est la raison pour laquelle nous avons pensé que l'utilisation d'un modèle cubique simple est le plus susceptible de rendre compte d'un certain nombre de caractéristiques propres aux systèmes poreux de l'illite et de la montmorillonite.

---

(\*) Observations réalisées sur une kaolinite ferrisée à 12 % de  $Fe_2O_3$  et qui montrent l'existence de liaisons B-F délimitant des sortes de cages ; cf CHAUVEL et TESSIER (1975).



b) Evolution des organisations isotropes :  
utilisation d'un modèle cubique

Nous nous référons au modèle cubique envisagé lors de l'étude du retrait de la montmorillonite (cf deuxième partie - Bp. 125). Dans ce dernier minéral, du fait de l'absence d'accolements F-F, la surface externe représente réellement celle qui se trouve en contact direct avec l'eau située entre les unités morphologiques.

En revanche, dans le cas de l'illite où existent des accollements F-F, la surface spécifique mesurée par la technique B.E.T. ne peut plus être considérée comme étant entièrement en contact avec l'eau contenue dans les pores situés entre les unités morphologiques. Celle-ci doit être ramenée à une valeur beaucoup plus réduite que nous situons grosso modo du fait du nombre de particules primaires superposées (6 environ) à 20 m<sup>2</sup>.

Examinons donc, compte tenu de la dimension des unités morphologiques, et pour une teneur en eau donnée, s'il existe effectivement une relation entre la valeur de la surface externe "active" des argiles et la présence dans le matériau d'un arrangement B-F tridimensionnel continu.

Le tableau 16 regroupe les évaluations des diamètres de pores effectuées dans le cas de l'illite et de la montmorillonite : ces comparaisons bien que grossières montrent que les teneurs en eau correspondant à l'existence d'une architecture tridimensionnelle continue de particules parfaitement plane, sont complètement différentes d'un minéral à l'autre : en effet, pour la montmorillonite, avec des unités morphologiques de l'ordre de 2  $\mu$ , l'architecture tridimensionnelle serait acquise dès 2000 % d'eau, tandis que dans l'illite la dimension des unités morphologiques va de pair avec une teneur en eau de l'ordre de 100-150 %. Ajoutons cependant que dans la montmorillonite, les particules en sont jamais rigoureusement planes en sorte qu'il vaut mieux adopter, en dernière analyse, la valeur de 1500 %. Au total, on aboutit par ce calcul à deux chiffres qui sont en accord avec nos données expérimentales; ils permettent donc d'étayer les hypothèses que nous avons été amené à formuler à propos de l'effondrement de l'arrangement tridimensionnel continu.

.../...

Tableau 16 : Utilisation du modèle cubique pour évaluer, à diverses teneurs en eau, le diamètre du pore compatible avec l'existence d'une architecture tridimensionnelle continue

Illite (20 m <sup>2</sup> /g)		Montmorillonite (60 m <sup>2</sup> /g)	
Teneur en eau (cm <sup>3</sup> /100 g)	φ du pore (μ)	Teneur en eau (cm <sup>3</sup> /100 g)	φ du pore (μ)
300	0,9	5000	5 μ
150	0,45	2000	2 μ
100	0,30	1500	1,5 μ
75	0,22	1000	1 μ
50	0,15	750	0,75 μ
25	0,07	300	0,30 μ

### 3° Conclusion

Dans les conditions physicochimiques choisies pour les différents essais, il apparaît qu'il existe au départ deux types d'organisation qui sont fondamentalement différents :

- celui de la kaolinite où, à tous les niveaux d'organisation il n'existe aucune organisation entre les cristallites ;

- celui de l'illite et de la montmorillonite où l'interaction entre les particules primaires devient la règle générale.

Ces constatations, quant à la présence ou à l'absence d'interactions entre les particules argileuses, sont importantes si l'on veut comprendre le comportement des matériaux aux diverses teneurs en eau. Nous ne savons pas encore cependant, pourquoi tel ou tel mécanisme d'interaction est mis en jeu.

Rappelons simplement ici que les ruptures de liaisons en bordure des feuillets sont de nature différente dans la kaolinite (minéral 1/1) et dans les autres argiles (minéraux 2/1).

De même, indiquons que les faces (001) des feuillets de la kaolinite sont neutres et constitués par des anions oxygènes (seuls ou accompagnés d'hydroxyles), alors que dans les minéraux 2/1 des cations viennent compenser les déficits de charge créés par des substitutions isomorphiques. A ce sujet, il est bon de mettre l'accent sur les différences entre illite et montmorillonite.

En effet, dans l'illite, un déficit de charge d'origine tétraédrique important associé à la présence du potassium (cation non hydraté) comme cation compensateur, ne peut que favoriser le rapprochement des feuillets et entraîner ainsi une association face à face des particules primaires. Dans la montmorillonite, en revanche, le déficit de charge est moindre et d'origine octaédrique, d'où la très faible tendance à l'association F - F ; de plus, la présence de calcium, cation à forte énergie d'hydratation dans tous les espaces interfoliaires maintient la stabilité de l'ensemble au niveau de 15 feuillets environ.

.../...

Cela étant, le rôle précis du cation ou de tout autre type de liaison pour expliquer les associations bord-bord et bord-face dans un assemblage tridimensionnel reste à définir complètement.

## II - ETUDE DE L'EVOLUTION DE L'ORGANISATION DES MINERAUX ARGILEUX EN FONCTION DE LA TENEUR EN EAU - CONSEQUENCES SUR LE COMPORTEMENT DES ARGILES

Au sein d'un matériau argileux, surtout lorsque les particules ne possèdent pas de véritables liaisons entre-elles, la quantité d'eau présente est explicitée classiquement en faisant intervenir un certain nombre de forces, qui assurent la stabilité du système poreux.

C'est la raison pour laquelle nous procéderons d'abord à quelques rappels au sujet de cette question, d'une part, en considérant l'intervention des phénomènes capillaires et, d'autre part en évaluant les forces osmotiques au moyen de la théorie de la couche diffuse.

Ceci étant, et du fait que ces méthodes ne constituent qu'une approche globale de l'évolution des teneurs en eau et donc du volume apparent des argiles (p. 4), nous envisagerons au cours d'une seconde phase ultérieurement les différents problèmes relatifs à l'organisation du système poreux et au comportement des matériaux qui découlent plus directement des données expérimentales recueillies au cours de ce travail.

### 1° Mise en évidence des forces intervenant au sein du corps poreux

#### a) Intervention des phénomènes capillaires

En se référant à la loi de JURIN-LAPLACE (cf p. 36), il est possible de calculer, à une contrainte P donnée, le rayon maximum d'un pore rempli par de l'eau. La relation s'écrit :

$$P_{g/cm^2} = \frac{0,15}{r} \quad (20^\circ C)$$

.../...

Cette relation indique qu'à pF 2,  $r = 15 \mu$ ,  $\phi = 30 \mu$   
à pF 3,  $r = 1,5 \mu$ ,  $\phi = 3 \mu$   
à pF 4,  $r = 0,15 \mu$ ,  $\phi = 0,3 \mu$

Ces données sont de toute évidence supérieures à la réalité.

Ainsi, à pF 2, les unités morphologiques ne peuvent délimiter des cavités plus larges que leurs faces (001), soit  $2 \mu$  pour la montmorillonite et  $0,4 \mu$  pour l'illite. De même, aux plus faibles teneurs en eau (pF 4), la taille que nous avons évaluée (cf p. 181) est notablement inférieure au diamètre du capillaire reporté ci-dessus.

On est donc conduit à conclure que l'application de cette relation pour déterminer la taille maximum du pore dans les argiles ne rend pas compte de la réalité du système poreux et, par voie de conséquence, de l'évolution de la teneur en eau : ceci n'est pas étonnant, car tout d'abord l'assemblage réalisé, qui est fort complexe, ne peut être assimilé à un système conduisant à la juxtaposition de tubes capillaires. En second lieu, une telle formule est inadaptée lorsque l'eau contient des ions, comme cela se produit en particulier au contact d'une surface argileuse chargée. C'est la raison pour laquelle nous allons tenter de prendre en compte ce dernier effet en utilisant la théorie de la couche diffuse et en faisant appel aux forces osmotiques.

b) Théorie de la couche diffuse : intervention des phénomènes osmotiques (\*)

Nous savons que l'évolution de l'organisation du système poreux des argiles procède d'une orientation mutuelle des unités morphologiques, c'est à dire en définitive d'un rapprochement de ces mêmes unités au fur et à mesure que la teneur en eau s'abaisse.

Mais nous savons aussi que la surface des argiles, et en particulier la surface externe, est une surface électriquement chargée en contact avec une solution saline. Pour des raisons

---

(\*) C'est M. CHAUSSIDON qui nous a aidé à présenter ces données ce dont nous le remercions bien vivement

d'électroneutralité, la charge négative de surface des argiles, doit être compensée par la présence de cations contenus dans la solution. De ce fait, il se crée, dans la couche de liquide au contact de la surface chargée négativement, une distribution différentielle des ions en fonction de la distance (cf figure 45

La théorie mise au point par GOUY et CHAPMAN permet de calculer, compte tenu des propriétés de la surface et des concentrations ioniques, globales, la distribution des ions et le potentiel électrique à une distance  $d$  donnée de la surface (figure 45). A partir de là, nous pouvons ensuite, pour deux surfaces parallèles calculer les forces d'interaction entre 2 couches diffuses à l'aide de la formule de LANGMUIR.

#### Calcul de la couche diffuse

Nous nous référons aux travaux de BRUYT (1952), BOLT (195), VAN OLPHEN (1963), FRIPIAT, CHAUSSÉDON et JELLI (1971), SHAINBERG, BRESSLER et KLAUSNER (1971).

Nous partons de la formule classique qui permet, connaissant la charge de surface  $\sigma$  de l'argile, de calculer le potentiel de surface  $\psi_0$ .

$$\text{De la relation } \sigma = (2n \xi kT / \pi)^{1/2} \sinh z/2$$

$$\text{on tire, } \sinh z/2 = \frac{\sigma}{(n \xi kT)^{1/2}}, \text{ d'où } z = \frac{2 \operatorname{arcsinh} \left( \frac{\sigma}{(n \xi kT)^{1/2}} \right)}{1}$$

$$\text{Mais, comme } z = \frac{ve \psi_0}{kT}$$

$$\text{on en déduit finalement } \psi_0 = \frac{kTz}{ve}$$

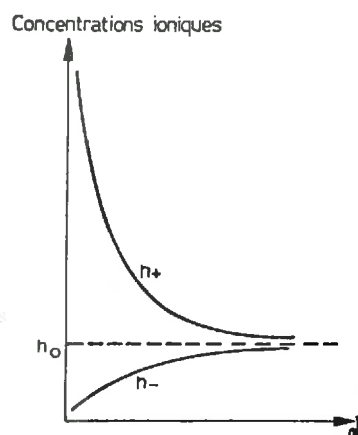
Avec :

$n$  = la concentration en ions exprimée en nombre d'ions par  $\text{cm}^3$  :  $n \times N$  (normalité)  $\times$  nombre d'AVOGADRO (6,02.1

$\sigma$  la charge de surface de l'argile calculée à partir de la surface totale (\*) et de la capacité d'échange en cation (en UES)

(\*) Surface totale pour la montmorillonite, surface externe BET pour les autres argiles

(a)



(b)

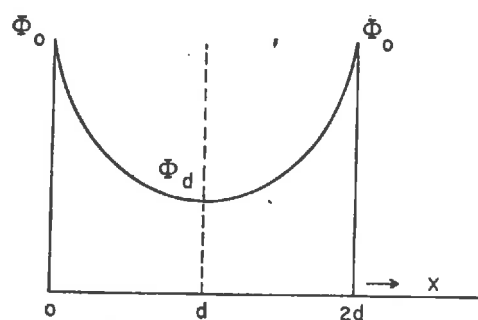


Figure 45 - Représentation schématique de la couche diffuse :  
 (a) concentration ionique en fonction de la distance  
 (b) distribution du potentiel entre deux surfaces chargées distantes de  $d$ .



- V la valence de l'ion saturant la C E C  
 e la charge élémentaire ( $4,77 \cdot 10^{-10}$  UES)  
 k la constante de BOLTZMANN  $1,37 \cdot 10^{-16}$   
 T la température absolue à 20°C  
 $\epsilon$  la constance diélectrique de l'eau (80)  
 d la demi-distance entre les deux surfaces = teneur  
 en eau/surface externe  
 $\Phi_0$  le potentiel électrique de surface

### Calcul de la pression de gonflement

A partir des données précédentes on peut déterminer la pression de gonflement en utilisant la formule de LANGMUIR, soit

$$R = 2 n k T (\cosh U - 1)$$

dans laquelle P est exprimée en dynes/cm<sup>2</sup> ( $10^6$  dynes = 1 bar)

Le paramètre u qui est établi à partir de

$$Kd = \sqrt{\frac{8T n}{\epsilon k T}} e v d$$

et de  $z = \frac{V e \Phi_0}{k T}$ , est relevé dans les tables.

### Présentation des résultats

Les calculs ont été effectués pour les 4 argiles à partir de la surface externe vraie, c'est à dire celle qui a été définie connaissant les caractéristiques stériques des unités morphologique. Rappelons que celle-ci a été évaluée à 58 m<sup>2</sup> pour la montmorillonite à 20-30 m<sup>2</sup> pour l'illite et à 63 m<sup>2</sup> pour la kaolinite.

Connaissant la capacité d'échange en cations et la pression pF appliquée au système poreux, nous avons calculé les concentrations ioniques globales de l'espace interunités morphologiques : pour toutes les argiles, celles-ci se situent dans la gamme des pF allant de pF 2 à pF 4 au voisinage de  $10^{-4}$  M/litre de calcium, ce qui est tout à fait plausible compte tenu du mode de préparation de nos échantillons.

Nous avons d'ailleurs reproduit dans le tableau 17 et la figure 46 les données relatives à la montmorillonite et évaluées pour cette concentration.

### Conclusion

A la lumière de ces résultats, il s'avère que les phénomènes considérés rendent correctement compte du gonflement des matériaux. Ajoutons toutefois que cette méthode n'explique que les possibilités globales de gonflement et ne permet pas de comprendre les accidents relevés sur les différentes courbes. Aussi, sommes-nous conduits à aborder maintenant la question plus en détail, en considérant directement l'évolution de l'organisation des échantillons pendant le phénomène de retrait.

#### 2° Etude de l'évolution des organisations au cours des différentes phases du retrait

Dans l'analyse qui va suivre, il apparaît nécessaire de faire dès le départ une distinction entre ce qui se passe aux fortes teneurs en eau et l'évolution aux teneurs plus faibles :

- Les fortes teneurs en eau concernent la phase initiale du retrait, qui est caractérisée pour l'illite, la montmorillonite et l'argile HB, par l'évolution d'une organisation isotrope jusqu'à son effondrement complet.

- La phase suivante, quant à elle, est marquée par une évolution beaucoup plus imperceptible de l'organisation du système poreux, en sorte que l'étude consistera à analyser plus spécialement l'organisation finale ainsi acquise.

D'après les résultats obtenus dans nos recherches expérimentales et pour les 4 matériaux étudiés, c'est le  $pF$  4 qui apparaît comme la valeur la plus convenable à la séparation des deux domaines.

Tableau 17 - Pressions de gonflement de la montmorillonite  
Ca calculées pour une concentration de  $10^{-4}M$

neur en 1 %	$10^{-6}d$ cm*	K d	U	Cosh u-1	pF
331	4,70	3,09	0,37	1,069	
287	4,00	2,62	0,50	1,13	1,79
255	3,50	2,29	0,75	1,29	2,19
224	3,00	1,97	1	1,54	2,41
205	2,70	1,77	1,2	1,81	2,60
192	2,50	1,64	1,5	2,35	2,81
161	2,00	1,31	1,9	3,42	3,06
117	1,31	0,86	2,5	6,13	3,39

\* L'épaisseur apparente des feuillets étant constante jusqu'à pF 4,4, nous ne tenons compte que de l'eau externe aux unités morphologiques dans le calcul de d.

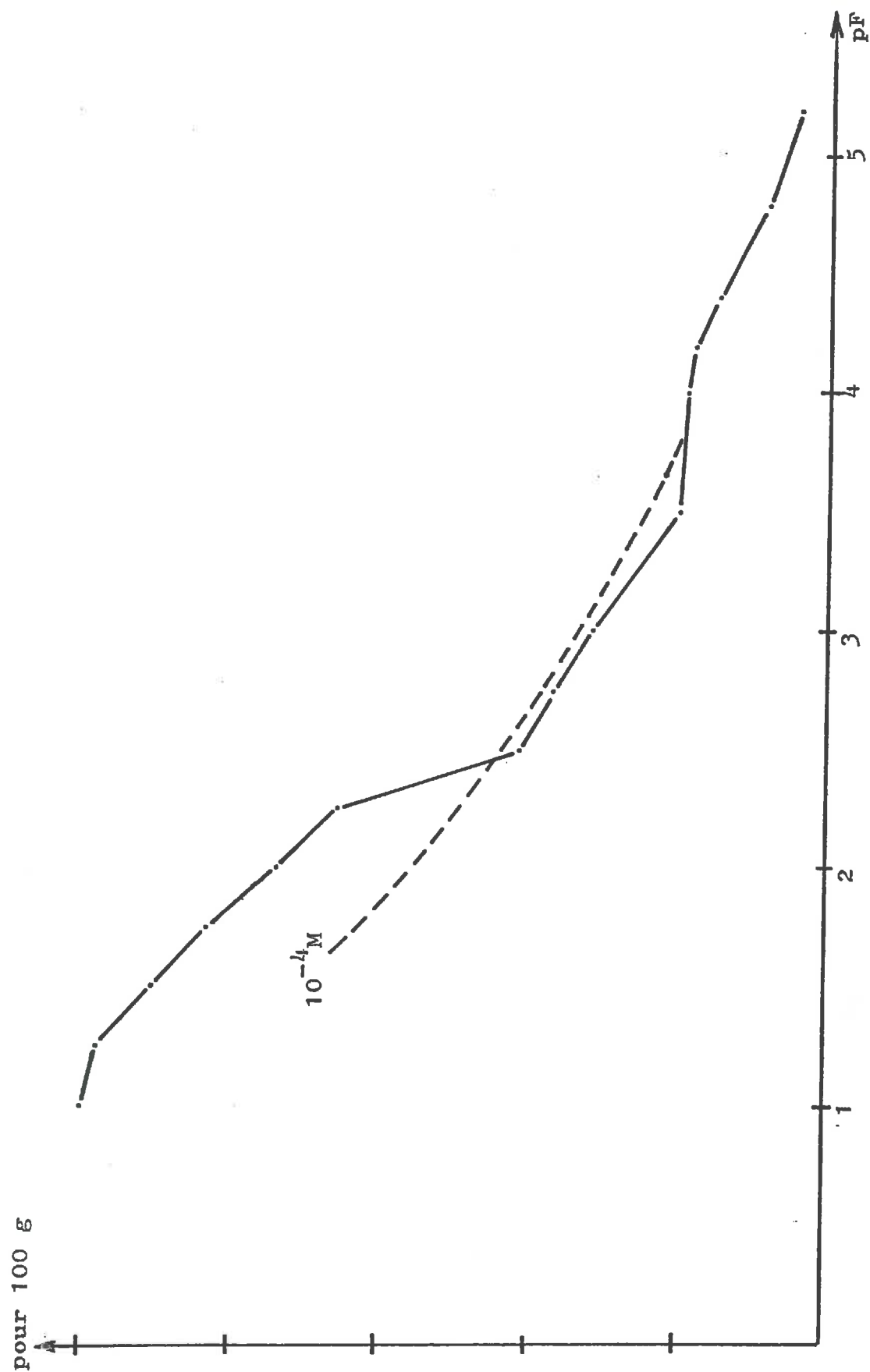


Figure 46 - Courbe expérimentale et pressions de gonflements calculées pour une concentration de  $10^{-4}$  M en calcium

a) Evolution des matériaux argileux purs aux fortes teneurs en eau

Au cours de cette phase du retrait, les échantillons restent toujours saturés ; on a donc :  $V_{\text{apparent}} - V_{\text{solide}} = H$  (teneur en eau). Comme  $V_g$  est constant pour une argile donnée, nous présenterons les résultats en faisant intervenir la seule teneur en eau.

α Cas des minéraux argileux à organisation initiale isotrope.

Pour expliquer le comportement de l'illite aux fortes teneurs en eau ( $pF < 4$ ), nous allons nous appuyer sur les deux éléments suivants :

- Surface externe vraie
- Dimension des unités morphologiques

Ainsi, la phase initiale du retrait consistant en une organisation isotrope ( $pF < 2$ ), lorsque la teneur en eau devient trop faible pour que l'arrangement B F soit stable, l'arrangement s'effondre et s'oriente brutalement.

De la même manière, nous pourrions expliquer l'évolution de l'organisation de l'argile H.B. en fonction de la teneur en eau. Toutefois, celle-ci étant constituée, en particulier, de minéraux 2/1, dont le mode association des particules primaires (BB - FF) engendre des unités morphologiques de dimension légèrement supérieure à celle de l'illite, les teneurs en eau observées aux faibles contraintes sont un peu plus élevées.

Cela étant, ce type d'interprétation appliqué à la montmorillonite n'est pas suffisant pour expliquer l'existence d'une phase isotrope de grande ampleur. Cette phase, qui existe depuis des teneurs en eau supérieures à 1000 % jusqu'à 370 %, ne peut être élucidée qu'en faisant intervenir un nouvel élément qui est la déformabilité des unités morphologiques. En effet, dans le cas de cette argile, ces unités sont capables de subir un chiffonnement qui restreint le volume de la maille délimitée par les unités morphologiques.

Cette particularité explique les comportements différents de l'illite et de l'argile H.B. d'une part, de la montmorillonite d'autre part ; seules en effet des unités morphologiques peu épaisses peuvent se déformer et assurer une surface en contact avec l'eau particulièrement grande, en sorte que la montmorillonite peut stocker beaucoup d'eau. Dans ces conditions, l'existence d'une phase rigide (\*) est prolongée. A l'opposé, dans l'illite et l'argile H.B., cette phase est fugace, car les unités morphologiques sont d'extension limitée et peu déformables.

Ainsi, nous mettons encore une fois en relief le rôle fondamental du mode d'assemblage des unités morphologiques au sein des matériaux. A ce propos, nous sommes amenés à faire deux remarques :

- les particules d'illite étant considérées comme non ou peu déformables, il est impossible de concevoir une quelconque orientation des unités morphologiques sans la mise en jeu d'un certain nombre de ruptures de liaison B-F et en même temps d'un glissement de celles-ci les unes par rapport aux autres.

- en revanche, pour la montmorillonite, il est incontesté d'après les observations microscopiques qu'un grand nombre de liaisons entre unités morphologiques subsistent jusqu'à la phase ultime du retrait.

ⓑ Cas de la kaolinite : organisation initiale directement anisotrope.

L'organisation isotrope correspond à un système où les associations entre les particules sont la règle. Dans ces conditions nous avons pu comparer les teneurs en eau des différentes argiles concernées en utilisant un modèle simplifié. En revanche, pour la kaolinite, les éléments de comparaison ne sont plus homogènes, car l'association B-F délimitant des pores de grande dimension n'existe plus ; il devient donc impossible d'utiliser ce modèle.

(\*) C'est ce qui correspond probablement à ce que l'on désigne dans le langage courant par le mot "gel". Cette phase rigide est située dans tous les cas entre la phase liquide et la phase solide

La seule chose que l'on puisse dire en l'absence d'association entre les cristallites c'est que le matériau reste plus fluide : aussi, la cohésion n'apparaît qu'à des contraintes beaucoup plus élevées (pF 2,5), donc à des teneurs en eau plus faibles.

b) Evolution des argiles pures aux faibles teneurs en eau

La première phase de l'évolution se termine lorsque, après un effondrement de l'organisation isotrope, le contact solide-solide devient la règle.

L'étude de la seconde phase portera sur un certain nombre de caractéristiques relatives au système poreux, en particulier à la limite volumique inférieure (limite de retrait).

α Limite de retrait.

Une des manifestations les plus significatives du comportement des sols argileux est généralement dans l'apparition aux forts états de dessiccation d'une "limite de retrait".

Ce type de comportement a été analysé pour la première fois par HAINES (1923). Signalons en outre que, dans le domaine du génie civil, cette notion a surtout été utilisée par PELTIER.

- Cas des argiles pures : matériaux expérimentaux.

Pour les 4 argiles que nous avons utilisées, la seule qui ne présente pas de limite de retrait est la montmorillonite. En effet, jusqu'à pF 6,5, la courbe de retrait de cette dernière suit pratiquement la droite de saturation (cf figure 27, p.100).

Ceci va donc à l'encontre d'une hypothèse communément admise selon laquelle toutes les argiles possèdent une limite de retrait.

En revanche, pour la kaolinite (figure 22 p.80), l'illite (figure 36 p.134) et l'argile H.B. (figure 42 p.161), une limite

.../...



de retrait existe effectivement ; l'allure des courbes est d'ailleurs tout à fait comparable aux courbes classiques de HAINES (figure 46). Toutefois, dans nos essais, si les porosités obtenues à la limite de retrait sont similaires, elles cachent parfois deux composantes :

- l'une liée à l'organisation des unités morphologiques (porosité texturale),
- l'autre, qui est contenue dans les macro ou microfissures (porosité structurale).

La distribution entre les deux types de porosité est difficile à estimer ; sur l'illite et l'argile H.B., en mesurant la porosité sur des écailles détachées du gâteau, nous avons pu toutefois obtenir des valeurs comprises entre 36 et 38 % qu'on peut dans ces conditions, considérer comme représentatives de la porosité texturale de l'échantillon.

#### - Cas des sols argileux

Le sol étant un mélange de fractions granulométriques différentes, la porosité du sol dépendra des proportions relative de chaque fraction. Signalons à ce sujet les travaux de REINHOLD, FIES et MONNIER (1970) et de FIES (1971) sur des mélanges argile-squelette (sables - limons ou billes de verre). Ceux-ci indiquent que la porosité d'un mélange dépend en particulier :

- de la granulométrie
- de l'arrangement de l'argile autour des grains du squelette
- de la nature minéralogique de l'argile

Ces éléments vont particulièrement dans le sens de nos résultats, puisque en dehors des caractéristiques d'ordre stérique propre au squelette, nous avons pu montrer que :

- l'organisation de l'argile au cours du retrait était différente d'un type d'argile à l'autre,

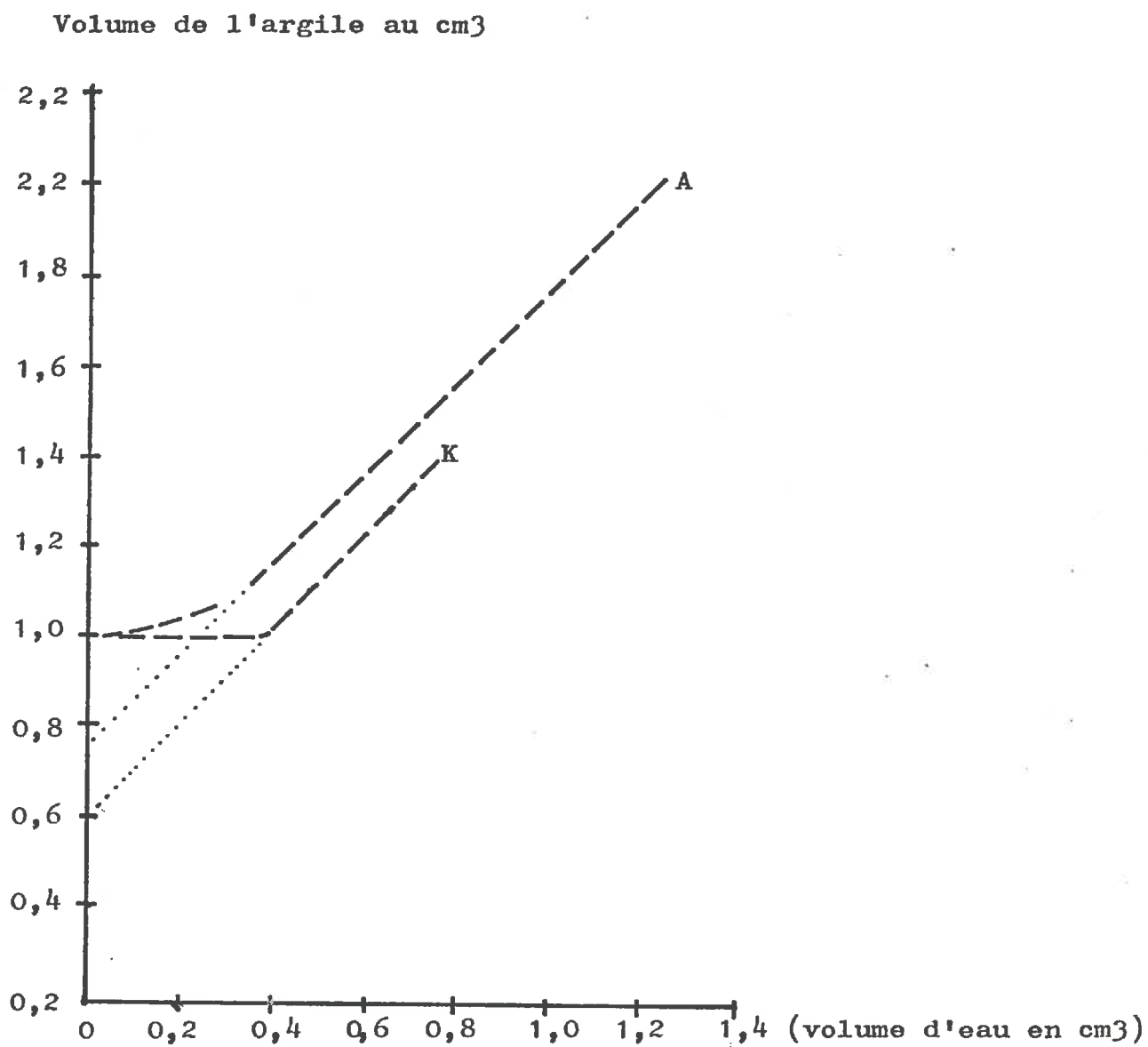


Figure 47 - Courbes de retrait établies par HAINES (1923)

A - argile extraite d'un sol

K - kaolinite

- dans la gamme des contraintes allant jusqu'à pF 6,5, la montmorillonite contrairement aux autres argiles, n'a pas de limite de retrait.

Il semble donc, à priori, difficile de fixer une limite de retrait sans tenir compte de ces deux données. Ajoutons, que pour les matériaux riches en smectites, le problème s'avère être encore plus compliqué.

### B - Analyse de la porosité aux contraintes élevées (pF > 4)

Le retrait propre à chaque argile étant évalué globalement par une certaine porosité, nous allons essayer maintenant d'en définir les composantes.

#### - Porosité résiduelle des argiles

L'étude des argiles aux fortes teneurs en eau nous a montré qu'il n'y avait pas de relation directe entre la capacité d'échange (CEC (\*)) et la teneur en eau.

En revanche, à partir de pF 4,0 (10kg/cm<sup>2</sup>) et jusqu'à pF 4,4 (25kg/cm<sup>2</sup>), les teneurs en eau sont, pour les quatre argiles pratiquement proportionnelles à la C E C ; on a en effet :

$$\text{C E C} = 1,03 \text{ H}_2\text{O} \text{ } 100 \text{ g} - 8,35 \quad (\text{figure 48})$$

$$\text{m.e./100 g.}$$

ce qui semblerait indiquer que l'eau concernée est essentiellement de l'eau d'hydratation des cations échangeables.

Ce résultat brut mérite d'être confirmé sur de nombreux échantillons d'argile à saturation calcique, car s'il en est ainsi, cette relation permettrait d'évaluer la quantité d'eau résiduelle, c'est à dire non accessible à la plante ; nous savons en effet que le point de flétrissement a été défini par les Agronomes comme correspondant à un potentiel matriciel égal à pF 4,2 (16 kg/cm<sup>2</sup>).

(\*) Détermination effectuée par la méthode NESSLER : déplacement des cations échangeables par l'acétate d'ammonium, puis lavage à l'alcool et enfin dosage du NH<sub>4</sub><sup>+</sup> fixé par la méthode KJELDAHL

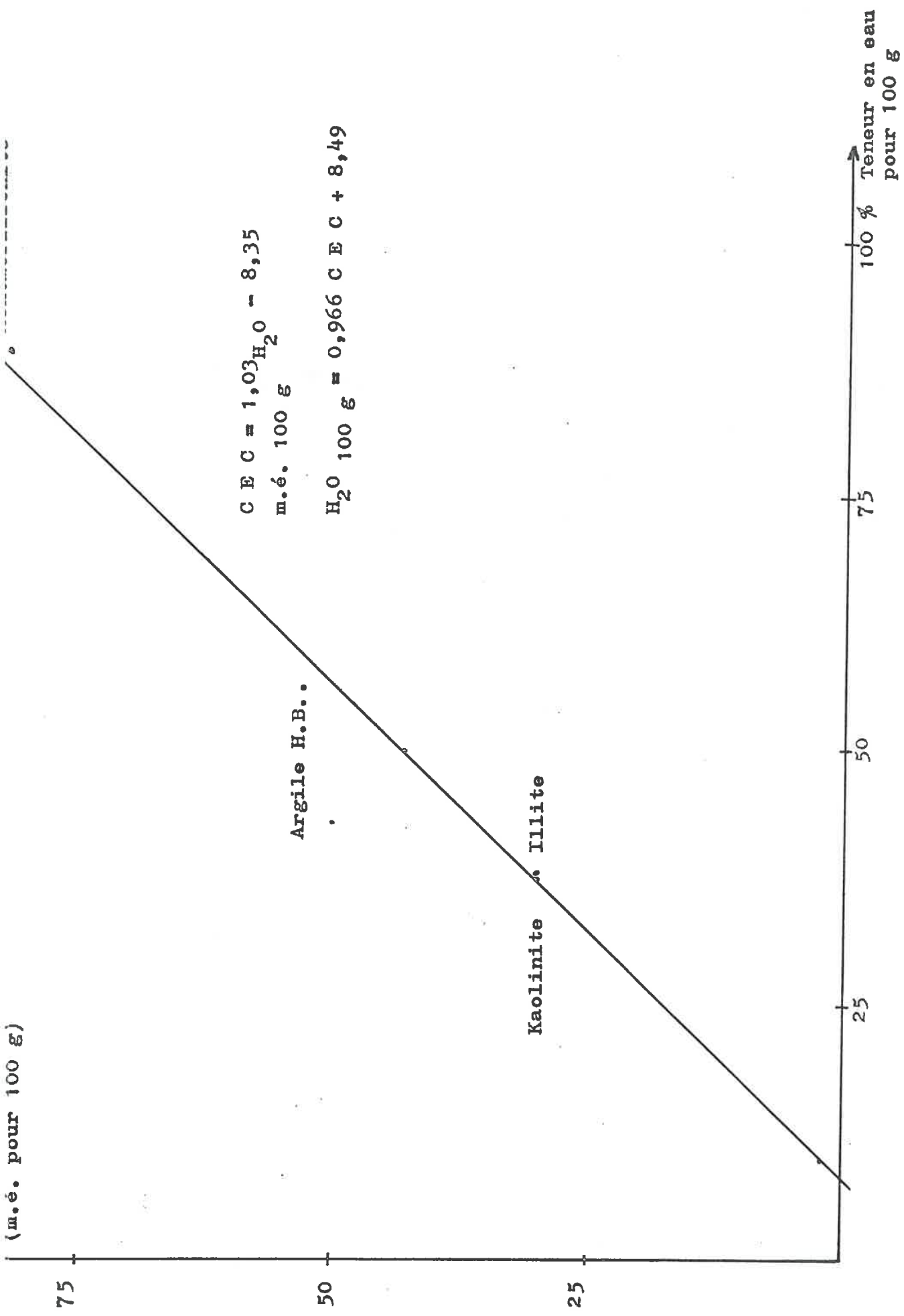


Figure 48 - Relation capacité en cations (CEC) - teneur en eau pour 100 g à pF 4,2

De la même manière dans le Génie Civil et pour des pressions  $< 25 \text{ kg/cm}^2$ , il devient aisé de calculer la teneur en eau résiduelle propre à l'argile considérée. On aurait ainsi la possibilité d'évaluer la quantité d'eau excédentaire qui serait à éliminer pour que les phénomènes de tassement deviennent négligeables.

#### - Porosité minimum

Pour les argiles du type illite et la kaolinite, la porosité minimum est la porosité acquise à la limite de retrait : un abaissement progressif de la teneur en eau, puis une dessiccation à  $105^\circ\text{C}$  suffisent à les amener à la porosité minimum.

Toutefois, les valeurs trouvées dans la bibliographie sur la kaolinite sont très variables et il semble, en particulier que les argiles présentant des cristallites de grande taille soient beaucoup plus poreuses [(HAINES (1923), DIAMOND (1960-1971), SILLS et Al (1973)] ; les valeurs sont environ égales à  $35\text{-}40 \text{ cm}^3$  de solide (\*). Ceci n'est pas le cas pour l'illite où les résultats paraissent beaucoup plus constants et de l'ordre de  $23 \text{ cm}^3$  pour  $100 \text{ g}$  (\*\*). (SILLS et al 1973, DIAMOND (1971).

En revanche, le problème dans le cas de la montmorillonite est plus délicat à aborder, car le passage à la porosité minimum se fait par phases successives pour arriver à la compacité maximum vers  $300^\circ\text{C}$ . La porosité est alors voisine de  $25 \%$ . Dans cette phase du retrait, le départ d'eau concerne surtout l'eau liée aux cations localisés entre les feuillets.

Ainsi, nous avons vu au cours de la 2ème partie (B), que  $d(001)$  de la montmorillonite reste constant et égal à  $20 \text{ \AA}$  jusqu'à  $pF 4,4$  ( $98 \%$  d'humidité relative,  $25 \text{ kg/cm}^2$ ). Cette hydratation correspond à la présence de 3 couches d'eau monomoléculaires situées entre les feuillets.

A partir de  $pF 4,8$  ( $95 \%$  d'H.R.),  $d(001)$  passe à  $15,5 \text{ \AA}$  : l'hydratation n'est plus qu'à 2 couches d'eau, et il est nécessaire

(\*) en prenant la densité des kaolinites  $d = 2,65$ , cela ferait  $48$  à  $51,5 \%$  de porosité.

(\*\*) en prenant la densité  $d = 2,30$ , cela ferait de  $37$  à  $38 \%$  de porosité.

de chauffer jusqu'à 300°C pour que l'eau d'hydratation soit complètement éliminée.

Signalons à ce sujet que le mécanisme de l'hydratation de la montmorillonite a été particulièrement bien étudié : parmi les travaux les plus récents ceux de MAMY (1968), CALVET (1973) PROSE (1975) réalisés au C.N.R.A. Versailles ont montré que l'hydratation de l'argile se traduit d'abord par un écartement des feuillets dû à la pénétration des premières molécules d'eau qui jouent en quelque sorte le rôle de "cales", puis le remplissage s'effectue progressivement. Ajoutons que cette pénétration est concomitante au recouvrement de la surface externe. (A ce sujet, on sait qu'à pH 4,4 l'épaisseur du film d'eau est évaluée à 100 Å environ et qu'il représente environ 50 % de l'eau contenue dans le minéral).

### 3° Evolution des mélanges argileux

Ce problème ne peut être traité en considérant les mélanges du seul point de vue minéralogique. Aussi, pour comprendre le comportement physique d'une argile, sommes-nous conduit à discuter des types morphologiques des différentes espèces argileuses.

#### a) Principaux types morphologiques - Problèmes posés par les argiles expansibles de transformation

Au cours de la deuxième partie de ce travail, nous avons mis en évidence essentiellement trois types morphologiques qui se caractérisent de la manière suivante :

- Kaolinite : cristallites hexagonaux.
- Montmorillonite : rubans peu épais (15 feuillets) à développement planaire particulièrement important,
- Illite : assemblages BE - TF, qui paraissent communs aux argiles micacées et à leurs minéraux de transformation (\*). A ce sujet, il apparaît impossible d'aborder l'aspect morphologique de cette étude sans envisager le problème des argiles de transformation. En effet, de nombreuses déterminations structurales réalisées sur de

---

(\* ) Nous n'envisagerons pas ici le cas des glauconites

échantillons micacés en provenance de profils pédologiques ont montré que ~~ceux-ci~~ constituent le point de départ d'une série d'argiles expansibles ; citons parmi les travaux les plus récents en France ROBERT (1972), JAMAGIE (1973), SEDDOH et PEDRO (1974)...

A ce jour, il est évident que les éléments que nous possédons à propos de la morphologie de ces argiles de transformation sont très limitées ; mais nous avons de fortes raisons de penser que les minéraux 2/1 expansibles contenus dans l'argile H.B. constituent un bon exemple d'argiles de transformation. Or il semble d'ores et déjà, bien que ce fait mérite encore d'être vérifié, que le comportement de ces smectites soit tout à fait différent de celles des smectites vraies : seules, en particulier, ces dernières semblent aptes à former des unités morphologiques peu épaisses et de grande dimension, qui conduisent à l'individualisation de gels thixotropiques.

Dans ces conditions, on doit distinguer deux sortes de sols à argiles expansibles :

- ceux contenant des smectites vraies, qui sont limités en France à l'affleurement de certains niveaux géologiques. Le problème des sols à smectites vraies est donc bien particulier et devrait faire l'objet d'une étude spécifique.

- ceux contenant des smectites de transformation caractérisées par le comportement "illitique" des édifices argileux. C'est alors un cas extrêmement répandu, où la plupart du temps d'ailleurs ces argiles sont associées à de la kaolinite.

Ainsi, compte tenu des données morphologiques que nous venons d'évoquer, nous pouvons tracer l'esquisse d'une classification morphologique des argiles qui est résumée dans le tableau 77. Seuls la glauconite et surtout les minéraux de transformation ne semblent pas devoir prendre place pour l'instant au sein de ce schéma, car il est probable que leur comportement se rapproche beaucoup plus des smectites vraies (nontronites) ROBERT, ISAMBERT et TESSIER (1973).



Tableau 18 - Esquisse d'une classification morphologique  
des argiles des sols

Type structural	Minéral argileux	Unités morphologiques
1/1	Kaolinite	crystallites
2/1 à cations hydratés	Smectites vraies	Rubans (B-B)
	Smectites de transformation	Constitués par l'association B - B - B - F de particules primaires : comportement "illitique"
	Vermiculites	
	2/1 à cation sec	
2/1 à cations hydroxylés	Vermiculites hydroxy-alumineuses	
	Chlorites	

b) Comportement d'un mélange argileux illite-kaolinite

Le cas des mélanges kaolinite - argiles à morphologie d'illite étant très répandu, nous sommes amenés à dire quelques mots sur les mélanges binaires de ce type.

L'exemple rapporté ici sera celui étudié par SILLS, AYLMOORE et QUIRK (1973) et relatif à des mélanges d'illite et de kaolinite en proportions variables. Signalons à ce sujet que la taille des cristallites de kaolinite utilisée ici est plus élevée que celle de l'argile de Provins ; de même l'illite possède une surface spécifique plus grande (ce qui correspond à des particules primaires moins épaisses). Pourtant la porosité de cette illite est comparable à celle de l'argile H.B. et à celle de l'illite du Fuy en Velay, c'est à dire 36 à 38 % à la limite de retrait.

A partir des résultats obtenus et consignés dans la figure 49, on peut faire apparaître les quelques éléments suivants :

$\alpha$  : la porosité du mélange illite - kaolinite varie peu quand le pourcentage de kaolinite demeure inférieur à 60 % (1).

Ce fait peut surprendre, mais en définitive s'explique aisément :

- grâce à la présence d'une hétérogénéité granulométrique considérée comme résultante de l'hétérogénéité intrinsèque de l'illite et d'autre part de l'adjonction d'une argile de nature différente.
- d'un autre côté, par suite de l'existence d'une déformabilité des unités morphologiques de l'illite due à un type d'arrangement propre à ces argiles (D B - F F) et qui leur permet d'épouser les formes lors de la phase finale du retrait.

(1) Si les porosités globales d'un mélange illite-kaolinite sont la plupart du temps identiques, la taille des pores n'est pas constante ; elle diminue quand la quantité d'illite croît.

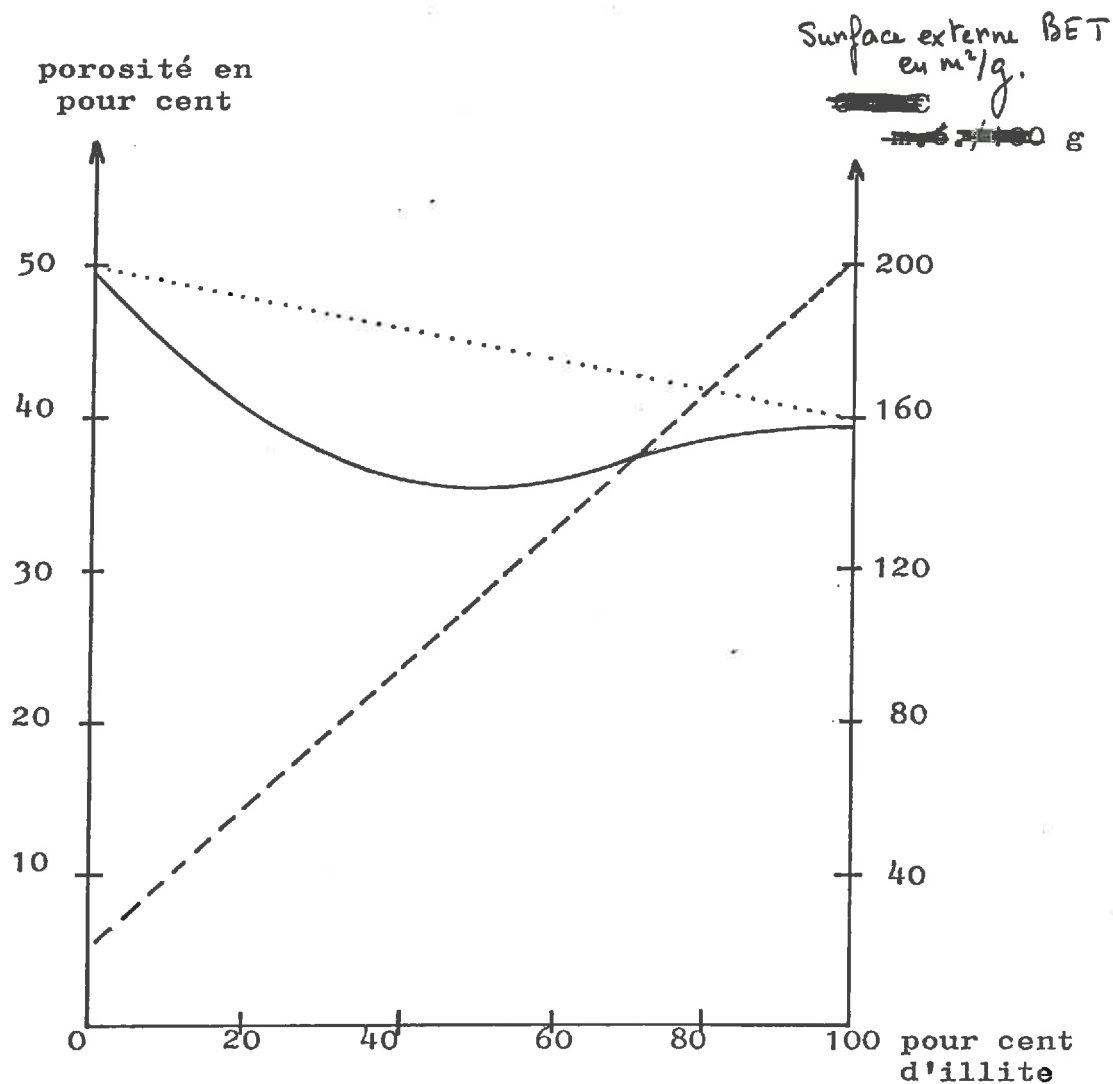


Figure 49 - Porosité et surface spécifique d'un mélange illite - kaolinite (d'après SILLS AYLMOORE et QUIRK 1971)

- ..... porosité théorique
- surface spécifique
- porosité (calculée à partir d'une densité réelle de 2,65 pour la kaolinite et de 2,80 pour l'illite)

3: La porosité du mélange illite-kaolinite n'est pas égale à la somme des porosités respectives de chaque argile ; nous vérifions ainsi les lois de mélange définies par FIES (1971) à propos d'assemblages mettant en oeuvre des fractions granulométriques différentes.

D'après ces résultats, on constate que le problème des argiles en mélange paraît assez simple et ceci résulte simplement du fait qu'une faible quantité d'argile illitique ou à morphologie d'illite (minéraux de transformation) imprime au mélange un comportement bien caractéristique.

#### 4° Conséquences : relations entre la constitution morphologique et le comportement des argiles

Le paragraphe précédent a bien montré le rôle joué par la constitution morphologique sur le comportement des échantillons. A cet effet, il est bon de rassembler les différentes données morphologiques des 4 matériaux étudiés et de les mettre en parallèle avec la teneur en eau aux fortes humidités (pF 1) et la valeur de la porosité évaluée à la référence pondérale, c'est à dire à 300°C (tableau 19).

##### a) Fortes teneurs en eau

En considérant que nous avons éliminé la plus grande partie des associations consécutives à l'histoire du matériau on peut, pour expliquer le comportement de l'argile aux fortes teneurs en eau, avancer les quelques arguments suivants :

- la montmorillonite est la seule argile dont la phase gel existe véritablement par suite de la grande taille et de la déformabilité importante des unités morphologiques.

- l'illite et l'argile H.B. possèdent une phase rigide (type gel) d'ampleur réduite, qui précède une orientation rapide des unités morphologiques ; rappelons que celles-ci sont de faible dimension et beaucoup moins déformables que dans la montmorillonite

Tableau 19 - Comportement des matériaux en liaison avec la constitution des unités morphologiques

	Montmorillonite	Illite	Argile H.B.	Kaolinite
Taille des unités morphologiques	# 2 $\mu$	0,4 $\mu$	0,6 $\mu$	0,2 $\mu$
Constitution des unités morphologiques	particules primaires associées B-B	particules primaires associées BB/FF	Particules primaires associées BB/FF + cristallites	cristallites
Déformabilité des unités morphologiques au cours du retrait	très importante	faible	faible	nulle
Teneur en eau à pF 1	500 %	98 %	145 %	208 %
Porosité texturale à la référence pondérale	25 %	36 - 38 %	36 - 38 %	38 %

- enfin, pour la kaolinite, l'absence d'une phase rigide est à relier à l'absence d'organisation initiale isotrope (liaisons B-F inexistantes).

### b) Porosité texturale

Nos investigations indiquent que les porosités des argiles à la référence pondérale 300°C vont en décroissant de la kaolinite, à l'illite-argile H.B. et à la montmorillonite. Compte tenu des observations microscopiques, ces données s'intègrent parfaitement dans le schéma explicatif des comportements ; ce dernier montre en effet :

- que la montmorillonite possède les unités morphologiques les plus minces et donc les plus déformables (15 feuillets à 10 Å°). Cette argile est donc potentiellement la plus compacte (p = 25 %).

- que la kaolinite est la seule argile, dans les conditions où nous avons amené les échantillons à dessiccation dont les unités morphologiques ne sont pas déformées ; ceux-ci possèdent d'ailleurs une forme régulière et une granulométrie peu étalée ; par conséquent la porosité à la limite de retrait est potentiellement la plus importante.

- que l'association des unités morphologiques d'illite ou des minéraux 2/1 de l'argile H.B. (association BB/TF) permet une certaine déformabilité. Celle-ci associée à une granulométrie étalée, limite d'une certaine manière une porosité texturale qui se situe à 2 niveaux :

- d'un côté, entre les particules primaires au sein de l'unité morphologique,
- d'un autre, entre les unités morphologiques elles-mêmes.

\*  
\* \*

B - REGARDS ET PERSPECTIVES GENERALES SUR L'ORGANISATION ET LE  
COMPOTEMENT DES DIFFERENTES ARGILES EN FONCTION DES CONDITIC  
DU MILIEU PEDOLOGIQUE -

INTRODUCTION

L'étude expérimentale des 4 types d'argiles nous a permis de montrer que, pour des conditions physicochimiques identiques, il était possible de concevoir des corps poreux présentant une organisation différente. Nous avons vu par exemple que, suivant les argiles, le mode d'association des unités morphologiques peut varier et que celui-ci expliquait en grande partie le comportement des matériaux argileux aux diverses teneurs en eau.

L'étude de l'association des unités morphologiques en fonction de la nature des conditions du milieu conduira à élargir le champ d'investigation expérimental et, ainsi, à situer ce travail par rapport aux quelques autres recherches de laboratoire portant sur l'organisation des argiles. Il est clair que, de ce point de vue, la présentation adoptée sera nettement plus prospective et servira en quelque sorte de conclusion d'ensemble à l'étu

\* \* \*

Cola étant, nous ne pouvons pas caractériser l'association des unités morphologiques sans faire intervenir :

- . la structure de l'argile à considérer,
- . l'environnement ionique de cette argile,
- . la teneur en eau présente dans l'échantillon ; car ce sont de tels éléments qui permettent d'expliquer le type d'association produit et, par la même, le comportement du matériau étudié.

Nous sommes ainsi conduits à présenter séparément le cas des 3 types principaux d'argiles : kaolinite, smectite et enfin autres argiles 2/1 (argiles micacées et dérivées).

.../...



1° Kaolinite

La structure de la kaolinite étant bien connue et même considérée comme fixe, nous ne reparlerons pas ici de cette question. En revanche, les données relatives à la taille des cristallites paraissent de première importance : ainsi, par exemple, plus les cristallites sont minces, plus la surface en contact avec l'eau devrait être élevée. Malheureusement, nous n'avons pas trouvé de données précises à ce sujet, l'hydratabilité aux faibles contraintes (pF 1 à 4) n'étant pas mise généralement en relation avec la surface externe.

a) Propriétés des suspensions

Rappelons d'une part les travaux de SCHOFIELD et SAMSON (1953-1954) et d'autre part ceux de MICHAELIS et BOLGER (1964), qui aboutissent à des résultats parfaitement concordants. On peut les résumer de la manière suivante :

Une kaolinite en présence d'électrolytes de nature différente (NaCl, CaCl<sub>2</sub>, KCl) se présente sous une forme appelée habituellement "défloculée", c'est à dire que l'organisation enregistrée directement anisotrope, conduit à considérée que les associations B-F n'existent pas.

En revanche, dès qu'on soumet l'argile à un pH acide (HCl), celle-ci s'organise sous forme dite "floculée", c'est à dire qu'il se crée des associations du type B-F. Les auteurs expliquent ce fait grâce à l'existence de charges positives situées en bordure des feuillets.

Au demeurant, de telles données obtenues sur des suspensions ne nous renseignent pas sur la stabilité des systèmes envisagés à des teneurs en eau plus faibles, en particulier aux contraintes peu élevées (pF 1 à pF 5), qui sont les plus courantes dans les sols. Il faut donc envisager maintenant cet aspect des phénomènes.

b) Type d'organisation et son évolution aux plus faibles teneurs en eau

Les kaolinites saturées par des cations comme Na, K, Ca conduisant à une organisation directement anisotrope, la porosité minimum est acquise dès que les cristallites arrivent au contact. En revanche, il en va différemment en présence d'autres conditions : c'est ainsi qu'en nous appuyant sur les travaux de A. CHAUVEL (1), nous allons envisager tout d'abord le problème de l'évolution de organisations isotropes des kaolinites ferruginisées ; puis en nous servant des notions classiques d'argile "floculée" et dispo- nous étudions l'évolution des kaolinites en conditions acides.

- Organisation des kaolinites ferruginisées ou déferru- ginisées (Travaux de A. CHAUVEL)

Le problème qui se pose, dans le cadre de la genèse des sols en Casamance (Sénégal) est celui de la transformation des sols rouges ferrallitiques en sols beiges ; en fait, il s'agit de montrer en quoi la présence ou l'absence d'oxydes de fer influence sur l'organisation de la kaolinite et, par voie de conséquence, sur le développement de certains phénomènes pédologiques.

En liaison avec des observations de terrain, deux types d'expériences ont été réalisées : les unes sur des argiles provenant des profils pédologiques et qui contiennent naturellement plus ou moins d'oxydes de fer ; les autres, sur des échantillons préparés artificiellement à partir de la kaolinite de Provins (A. CHAUVEL et D. TESSIER, 1975).

Les résultats, obtenus avec des quantités variables d'oxyde de fer, convergent et se résument lorsque les quantités d'oxydes de fer deviennent importantes aux éléments suivants :

- une porosité importante (>50 %) à la limite de retrait
- des phénomènes de gonflement et de retrait pratiquement annulés,
- des propriétés mécaniques qui sont indépendantes de la teneur en eau, tant que la contrainte exercée ne détruit pas l'organisation de l'argile.

.../...

Or, toutes les données que nous avons pour caractériser l'organisation, se rejoignent et montrent que, dans ces conditions, l'organisation isotrope B-F de départ est conservée.

Ceci n'est bien sûr pas le cas de l'argile déferrifiée provenant du milieu naturel ou de la kaolinite de Provins pure : elles possèdent toutes deux les caractéristiques énoncées dans la deuxième partie (cf p. 77).

Nous voyons donc que le mode d'association des cristallites et en particulier sa stabilité devient d'un grand intérêt pour expliquer le comportement physique et mécanique des matériaux de même type.

Mais, au-delà du comportement instantané, c'est toute l'évolution pédologique du profil qui peut être modifiée progressivement. Ainsi, à partir du moment où l'argile n'est plus ferruginisée, le sol devient plus compact, la circulation des fluides est modifiée et son économie en eau complètement transformée (A. CHAUVEL, 1975).

Il en résulte que le mode d'organisation des argiles peut être un élément de première importance, si l'on veut comprendre certains phénomènes pédologiques.

- Problème des caractéristiques physiques et mécaniques des kaolinites "floculées" et "dispersées"

En se plaçant dans les conditions physicochimiques telles qu'elles ont été définies par SCHOFIELD : pH acide, pH neutre ou alcalin en milieu sodique ou calcique, les mécaniciens et physiciens des sols ont étudié le comportement et les caractéristiques des corps poreux à des teneurs en eau faibles ( $< 50 \%$ ).

Disons immédiatement que les résultats obtenus à l'aide des méthodes utilisant un mode de compaction par choc sont difficiles à utiliser, car elles entraînent très probablement une déformation des particules et une perturbation variable.

Cela étant, même en amenant les argiles à dessiccation par séchage à l'air, les porosités que nous avons relevées à la limite de retrait sont variables et contradictoires : ainsi, la porosité d'une argile "dispersée" peut être plus grande ou plus faible que celle du même matériau "floculé".

En réalité, les porosités obtenues avec ces argiles à la plus grande dessiccation indiquent que nécessairement l'organisation isotrope ne subsiste plus (contrairement à ce que nous obtenons en présence d'oxydes de fer). Le problème serait plutôt d'établir à partir de quelle référence énergétique, les liaisons du type BF sont rompues. Ce type de renseignement devrait être intéressant à l'avenir pour prévoir le fonctionnement des sols à kaolinite.

## 2° Smectites

Notre étude des argiles smectitiques se limitera au cas de la montmorillonite, car c'est ce dernier minéral qui est de loin plus étudié.

Signalons tout d'abord que, contrairement à la kaolinite, la composition peut varier, en particulier au niveau de la couche octaédrique.

### a) Relation entre l'hydratation de la montmorillonite et quelques caractéristiques structurales

Cet aspect du problème a été envisagé par FOSTER (1955), DAVIDTZ et LOW (1970). Ces auteurs ont montré en effet, que le gonflement de la montmorillonite dépend du déficit de charge folé et de sa localisation. Ainsi, quand le déficit de charge octaédrique passe de 0,5 à 0,3, le gonflement de l'argile augmente.

Or, nous avons vu précédemment que le gonflement était fonction de la surface externe vraie du matériau qui dépend en dernière analyse de l'épaisseur de l'unité morphologique.

Dans ces conditions, tout porte à croire que l'épaisseur de l'unité morphologique est en relation avec les caractéristiques structurales de l'argile et en particulier avec le déficit de charge et sa localisation.

### b) Rôle du milieu physicochimique

Dans le cas de la montmorillonite, le problème doit être envisagé à 2 niveaux :

- au niveau de l'association F-F des feuillets (nombre de feuillets superposés) pour constituer une particule primaire
- au niveau de l'association des particules primaires (constitution de l'unité morphologique).

### Épaisseur des unités morphologiques

Nous avons reproduit dans le tableau 20 les résultats obtenus par VAN OLPHEN (1973), EDWARDS et QUIRK (1962) et surtout ceux de BANIN et LAHAV (1968) et qui sont relatifs à l'épaisseur du "tactoïde"; ces résultats sont très révélateurs, car ils indiquent que, pour une même argile, l'épaisseur du tactoïde dépend essentiellement du cation saturant la capacité d'échange. En considérant un deuxième paramètre, qui serait par exemple le déficit de charge foliaire, nous disposons ainsi très probablement, pour des conditions de préparation standard à définir, des principales données, qui permettent de mettre en évidence une certaine surface externe disponible pour l'eau dans les diverses saturations cationiques et donc de déterminer l'hydratabilité potentielle de l'argile.

### Extension des unités morphologiques et leur association

Si le nombre de feuillets constituant l'épaisseur du tactoïde a fait relativement l'objet de nombreuses études, en revanche les données concernant la dimension de l'unité morphologique reste imprécise.

A cet effet, tous les auteurs sont d'accord pour considérer que l'association B-B entre particules primaires est la règle, mais son extension dans le plan est mal définie : VAN OLPHEN (1973)

.../...

Tableau 20 - Epaisseurs du tactoïde évaluées par différents auteurs dans des conditions de saturation cationique déterminées et exprimées en nombre de feuillets.

Cation	BANIN & LAHAV*	EDWARDS & QUIRK	VAN OLPHEN
Li	1,00		
Na	1,47	1,15	3
K	2,00		
Rb	2,15		
NH <sub>4</sub>	2,60		
Cs	4,60		
Mg	9,60		
Ca	10,88	7,35	10
Ba	11,15		

\* Calcul effectué à partir de données optiques



indique une dimension de l'ordre du micron ; les autres auteurs parlent tout simplement de "large partic les".

En ce qui concerne l'association entre ces unités morphologiques, M. EMMEN et PRATT (1957) considère que l'association B-F n'existe pas, tandis que VAN CLIPPEN (1973) l'envisage pour les argiles sodiques et calciques. Signalons que le travail expérimental rapporté dans ce mémoire tend à prouver que les associations B-F existent effectivement dans la montmorillonite Ca et qu'elles sont conservées lors de la dessiccation. Mais il est certain que des preuves directes devront être apportées, ultérieurement, en particulier pour des conditions physicochimiques différentes.

### c) Organisation et comportement aux faibles teneurs en eau

L'organisation initiale de l'argile pouvant être isotrope ou anisotrope, il s'agit de montrer ici en quoi l'organisation initiale influe sur les propriétés des matériaux aux faibles teneurs en eau (contraintes correspondant aux faibles hydratations dans les sols,  $p_T > 4$ ). A cet effet, nous passons en revue un certain nombre de points relatifs à l'aptitude à la dispersion et à l'étude des propriétés physiques et mécaniques.

#### Aptitude à la redispersion

Chacun sait qu'il est très facile de disperser une montmorillonite Na<sup>+</sup> séchée à l'air. En revanche, en ce qui concerne la montmorillonite Ca, si elle gonfle effectivement après dessiccation, il est quasi impossible toutefois de bien la redisperser. Pour expliquer ce fait, on peut faire intervenir dans le cas de l'argile calcique :

- les propriétés du cation Ca saturant la capacité d'échange qui n'est pas susceptible de s'hydrater fortement,
- des possibilités de déformation relativement faibles (épaisseur de l'unité morphologique  $\approx$  10 feuillets)
- enfin le maintien des associations B-F qui sont de relativement grande énergie.



En revanche, pour la montmorillonite Na, la bonne disposabilité prouve que les liaisons à tous les niveaux sont de faible énergie.

Ce type d'information relatif à la stabilité des assemblages est très utile, si l'on veut comprendre le comportement des argiles des sols ; en effet, à une association du type stable correspondant des possibilités de gonflement-retrait limitées, de possibilités de déplacement de l'argile nulles ; il en découle donc des nombreuses conséquences sur les propriétés physiques du sol et l'évolution pédologique du profil.

#### Etude des propriétés physiques et mécaniques

Les caractéristiques physiques et les propriétés mécaniques des matériaux sont, d'une certaine manière, une conséquence de la plus ou moins grande stabilité des assemblages texturaux dans les argiles.

Ainsi, les mesures physiques de gonflement potentiel (\*) rendent compte de la plus ou moins grande réversibilité du phénomène de retrait ; mais, s'adressent à des matériaux du sol, ce gonflement fait intervenir, outre la nature de l'argile et son mode d'assemblage propre, la granulométrie du matériau et l'organisation du plasma autour des grains du squelette. Ce type de mesure, lorsqu'il porte sur des argiles pures et homogènes révèle d'un autre côté, le degré de stabilité de l'argile dans un état de saturation cationique donné (exemple différence entre Na et C

Mais nous pouvons aussi nous référer à d'autres mesures telles celles relatives à la résistance à la traction ou à la compression. C'est ainsi que DOWDY et LARSON (1971) ont effectué des déterminations de ce type sur la plupart des argiles saturées avec différents cations. Les résultats obtenus peuvent se résumer de la manière suivante :

- à une pression partielle donnée (< 95 % d'humidité relative), la montmorillonite ferruginisée artificiellement est toujours celle qui s'avère être la plus poreuse ; nous confirmons

(\*) Augmentation du volume apparent d'un agrégat soumis à un libre gonflement par humectation prolongée sur une plaque poreuse par rapport au volume apparent à l'état sec (exprimé en %).

ainsi ce que nous avons obtenu sur la kaolinite ;

- les seuils de rupture caractérisant les différents échantillons argileux n'ont pas, en première analyse, de relation directe, ni avec la porosité, ni avec la teneur en eau. Ce fait paraît à première vue surprenant, mais s'explique du fait qu'une contrainte mécanique peut :

- soit resserrer des particules, en sorte qu'il en résulte un accroissement de la densité apparente ;

- soit détruire essentiellement certaines liaisons pré-existantes et créer de cette manière des particules libres, qui provoquent ainsi une instabilité du matériau.

Ces diverses remarques conduisent en définitive à concevoir l'existence de seuils qui seront à préciser ultérieurement.

### 3° Argiles à morphologie d'illite

Les travaux de cette nature portant sur l'organisation des argiles de ce type sont pratiquement inexistantes. On ne peut que signaler celui réalisé par O' BRIEN (1971) ; en opérant sur des vases et des sédiments illitiques, celui-ci a démontré en effet l'existence d'une organisation isotrope aux fortes teneurs en eau.

Il est d'autant plus désolant d'en être là que le problème de l'organisation de ces argiles dans les sols tempérés présente un grand intérêt et ce d'autant plus que les conditions physico-chimiques dans lesquelles ces argiles évoluent peuvent être très variées :

- milieu acide et plus ou moins désaturé,
- milieu hydromorphe et réducteur,
- milieu saturé par du calcium.

Il reste donc un très gros travail à faire si l'on veut comprendre le comportement physique de certains types de sols et le mettre en relation avec le développement du profil.

#### 4° Essai de synthèse sur la stabilité des assemblages argileux dans le milieu superficiel

Les résultats de ce travail expérimental portant sur l'organisation des argiles, ainsi que les données bibliographiques citées en référence, nous ont montré que, suivant les conditions du milieu et suivant les types d'argiles, l'existence et la stabilité des liaisons entre particules (unités morphologiques) étaient essentiellement variables.

Or, si ces liaisons ont une influence directe sur les microorganisations, elles conduisent nécessairement, à un niveau plus global, à des propriétés que nous connaissons bien : il s'agit de la résistance aux agents climatiques (stabilité structurale), des possibilités de déplacement de particules (lessivage, colmat ou tout simplement des phénomènes de gonflement et de retrait.

Nous allons faire le point sur cette stabilité des assemblages en traitant le sujet :

- d'abord, au niveau de la constitution des unités morphologiques,
- ensuite, au niveau des liaisons entre unités morphologiques, puis, nous aborderons quelques conséquences sur l'hydratation et le comportement d'une formation argil

#### - Constitution de l'unité morphologique

Suivant les argiles, cette unité est constituée soit de particules primaires (kaolinite), soit d'une association de particules primaires (minéraux 2/1).

Dans la kaolinite, les cristallites étant isolés, leur existence n'est pas remise en cause par les phénomènes naturels du type échange cationique.

En revanche, le problème se pose au niveau des minéraux du fait que, dans ce cas, l'unité morphologique est une particule "complexe".

Pour ceux-ci, les résultats semblent indiquer deux types de comportements différents :

- pour les argiles à faciès illitique, l'unité morphologique resterait identique quand on passe de l'état sodique à l'état calcique ;

- au contraire, pour la montmorillonite, les caractéristiques de l'unité morphologique dépendent :

- . du déficit de charge interne aux feuillets,
- . du cation saturant la capacité d'échange ; ces éléments jouant à la fois sur l'épaisseur de l'unité morphologique, et sur la stabilité des liaisons B-B entre les particules primaires.

#### - Association des unités morphologiques

Si la constitution de l'unité morphologique ne semble pas toujours liée au milieu physicochimique et peut dépendre essentiellement de caractéristiques structurales, à l'opposé, l'association des unités morphologiques découle toujours des conditions physicochimiques du milieu.

Dans la kaolinite, le milieu ferruginisant conduit à des liaisons B-F très stables. Ces liaisons deviennent probablement moins stables en milieu acide et disparaissent pour toutes les autres conditions du milieu (Ca, Na, K).

Ce dernier comportement contraste avec celui des minéraux 2/1 dans lesquels, en milieu calcique, l'association B-F paraît être la règle ; en revanche, dans d'autres milieux physicochimiques nos informations sont à peu près nulles ou très imprécises.

#### - Conséquences sur l'hydratation des argiles

La dimension des unités morphologiques propres à la kaolinite et à l'illite étant considérée comme fixe ou peu modifiable, les paramètres stériques (taille, épaisseur) et par conséquent, l'hydratation de ces argiles variera peu. Celle-ci ne dépendra que de l'association des unités morphologiques, c'est à dire, en dernière analyse, des conditions physicochimiques du milieu.

A l'opposé, dans les smectites, les caractères physicochimiques du milieu joueront directement :

- sur la surface externe,
- et sur l'association des unités morphologiques ; les possibilités d'hydratation seront donc extrêmement variables en fonction des conditions du milieu.

- Conséquences sur la stabilité du corps poreux

La stabilité du corps poreux est assurée :

- d'un autre côté, par une certaine solidité des liaisons entre les unités morphologiques,
- et d'un autre, par leur plus ou moins grande déformabilité.

Ainsi, dans une kaolinite, tant que l'état de contrainte ne joue pas sur la stabilité, l'organisation isotrope mettant en oeuvre des cristallites rigides et des associations B-F, les phénomènes de gonflement - retrait sont nuls. Au contraire, dès que la contrainte appliquée provoque une rupture des liaisons B-F, il y a nécessairement effondrement brutal de l'organisation isotrope.

En revanche, dans le cas des smectites, même si les liaisons B-F sont stables, la déformabilité des unités morphologiques doit probablement toujours être pris en compte et jouer ainsi dans les phénomènes de gonflement et de retrait.

On conçoit aisément dans ces conditions que, la notion de seuil de contrainte nécessaire à l'obtention d'un effondrement brutal de l'organisation soit une notion utile à préciser, surtout lorsque l'on a affaire à des éléments non déformables.

\* \* \*

En conclusion, nous aboutissons aux résultats que, dans la description du système poreux, la connaissance du type d'association des particules primaires paraît être un élément essentiel si l'on veut expliquer le comportement du matériau. Cela étant, nous

.../...

sommes amenés à considérer le système poreux comme une sorte de "matrice", dont les caractéristiques géométriques sont parfaitement définies et qui sert en quelque sorte de "réservoir" pour l'eau.

Mais, d'un autre côté, pour expliciter l'hydratation de l'argile, nous sommes amenés à faire intervenir ses propriétés de surface. Or, celles-ci risquent d'être modifiées non seulement, par les conditions physicochimiques du milieu : pH, concentration, type de cation, mais aussi par la présence d'"impuretés", tels oxydes, hydroxydes et matières organiques ; ces dernières, en particulier, peuvent jouer un grand rôle sur les surfaces, soit en les recouvrant et en les rendant hydrophobes, soit en renforçant certaines liaisons, soit encore en les annihilant. Il y a là, en définitive, un vaste domaine qui s'ouvre pour les investigations ultérieures.

\*  
\* \*  
\*



## CONCLUSIONS GÉNÉRALES

En abordant ce travail, nous nous étions proposés d'amener depuis des teneurs en eau élevées (150 à 750 %) jusqu'à la référence pondérale (300°C), un certain nombre d'argiles représentatives des sols afin de suivre l'évolution de leurs organisations au cours d'un processus de dessiccation.

A cet effet, nous avons mis au point une méthode d'étude de l'orientation des particules basée sur la diffraction des rayons X et nous avons utilisé un certain nombre de techniques appropriées au contrôle du volume des échantillons en voie de dessèchement. Enfin, pour visualiser l'organisation des particules à complète dessiccation, nous avons procédé à des examens au microscope électronique à balayage.

L'application de ces différentes méthodes ou techniques, ainsi que les données bibliographiques nous amènent à un certain nombre de conclusions générales. La plus importante de ces conclusions réside dans le fait que l'évolution de l'organisation d'une argile ne peut être décrite sans faire intervenir la notion d'unités morphologiques, qui se caractérisent à la fois par leur constitution et leur association.

### Constitution des unités morphologiques

Dans les conditions expérimentales utilisées, nous avons été amenés à distinguer dans les argiles trois types morphologiques principaux :

1. le type kaolinite, il s'agit tout simplement des cris-  
tallites isolés (particules primaires) ;

2. le type illite, commun à l'illite et à ses minéraux de transformation, comme la vermiculite, les smectites de transformation ou les édifices interstratifiés provenant de ces minéraux. Ici, l'unité morphologique est une sorte d'agrégat constitué par l'association B-B - F-F d'un certain nombre de particules primaires chacune d'entre elles étant composée de 10 feuilletts environ.

.../...



3. le type montmorillonite, constitué par une association B-B de particules primaires à développement planaire particulièrement important puisque les "rubans" peuvent atteindre  $\approx 2 \mu$ .

La constitution de ces diverses unités est un élément important pour la caractérisation de tout matériau argileux étal donné qu'elle conditionne la surface externe vraie du minéral, elle détermine son hétérogénéité granulométrique et qu'elle commande enfin sa plus ou moins grande déformabilité.

Il est indispensable toutefois de préciser que tous ces éléments définis pour des argiles calciques ne sont pas nécessairement identiques dans d'autres conditions physicochimiques : si pour le type illite et kaolinite, le passage à état sodique par exemple ne semble pas devoir modifier de manière tangible la constitution de l'unité morphologique, il n'en va pas de même pour la montmorillonite et probablement pour un grand nombre d'autres smectites où l'épaisseur et la dimension des unités morphologiques varient avec les conditions du milieu.

#### Mode d'association des unités morphologiques

En présence de conditions calciques, l'évolution de l'organisation de la pâte argileuse met en oeuvre :

- soit une organisation isotrope, suivie d'une orientation mutuelle des particules ;
- soit une organisation directement anisotrope qui, dès les plus fortes teneurs en eau, résulte d'une orientation mutuelle des unités morphologiques.

L'organisation isotrope repose sur l'existence de liaisons B-F entre les unités, liaisons qui sont caractérisées par une certaine énergie. En revanche, l'organisation directement anisotrope implique qu'il n'existe pas de liaisons B-F et que, par conséquent, les particules s'orientent directement suivant leur plus grande face.

La présence ou l'absence de ces liaisons, qui est associée à certaines caractéristiques propres à chaque type morphologique

(déformabilité, hétérogénéité dimensionnelle, surface externe vraie), constitue un élément important, car elles vont nous permettre de décrire de manière plus rigoureuse l'évolution de l'organisation des systèmes poreux des différents matériaux argileux.

### Evolution de l'organisation des argiles en voie de dessiccation

- Nous allons d'abord examiner les systèmes poreux dans lesquels les unités morphologiques ne sont pratiquement pas déformables et où les liaisons B-F sont rompues pour des énergies de plus en plus faibles.

Le premier cas serait celui de la kaolinite feruginisée où les contraintes appliquées lors de la dessiccation ne suffisent pas à rompre les liaisons entre les unités morphologiques : dans ces conditions, la porosité de l'argile qui est élevée reste constante en sorte que les phénomènes de retrait et gonflement sont à peu près nuls.

Le second cas serait celui de l'illite et de ses minéraux de transformation à l'état calcique pour lesquels l'effondrement de l'organisation isotrope se produit vers pF 2,5. L'organisation finale (pF 6,5) ne dépend plus alors que des caractéristiques stériques et de la déformabilité des unités morphologiques au contact (Porosité voisine de 36 %).

Ce problème se ramène d'ailleurs à celui de la kaolinite calcique, puisque, dans ce cas, l'évolution de l'organisation consiste en un simple rapprochement face-face des cristallites et que la porosité à la limite de retrait ne dépend là aussi que de caractéristiques stériques.

- Si maintenant nous examinons l'évolution d'une argile possédant des unités morphologiques très déformables et associées suivant le mode B-T, nous abordons en fait le cas de la montmorillonite.

La présence de grandes quantités d'eau au sein de ce minéral ne peut être expliquée que par suite de l'individualisation d'un réseau tridimensionnel mettant en jeu des unités morphologiques minces (développant par conséquent une surface externe vraie

importante) et de grande dimension ( $\neq 2 \mu$ ). Ces unités se déforment et peuvent ainsi se rapprocher sans que les liaisons B-F soient rompues ; d'où la possibilité de l'existence pour la montmorillonite d'une phase gel particulièrement développé.

Ajoutons que la plus grande partie du retrait se produise sans modification de l'épaisseur apparente des feuillets, la montmorillonite ne se différencie pas des autres argiles, tant que le pF restent inférieurs à 4,4 ; le phénomène est donc là encore essentiellement de nature interparticulaire. Toutefois, pour des contraintes  $> pF 4,4$  (25 kg/cm<sup>2</sup>), le départ d'eau intéresse aussi l'eau interfoliaire et c'est ce qui permet de comprendre que la montmorillonite n'a pas de limite de retrait.

Ces considérations étant établies, il reste maintenant en guise de conclusion à présenter quelques réflexions sur les relations entre les phénomènes d'organisation des différentes argiles et le comportement des sols argileux au sein du milieu superficiel.

#### Les phénomènes d'organisation des argiles et le comportement des

L'étude que nous venons de présenter nous a amené à mettre en évidence trois grands types morphologiques dans les argiles ; quoique grossière et non exhaustive, cette classification nous permet maintenant de distinguer trois types de comportements dans les sols riches en argiles :

- comportement des sols riches en kaolinite,
- comportement des sols contenant des argiles du type smectite dont l'organisation est comparable à celle de la montmorillonite,
- comportement des sols constitués d'argiles à morphologie d'illite.

Pour chaque type de sol, nous examinerons, en relation avec les caractéristiques morphologiques et l'arrangement, un certain nombre de conséquences d'une part, sur les propriétés physiques et mécaniques, et d'autre part, sur l'évolution du profil pédologique.

### - Sols kaolinitiques

Les sols riches en kaolinite sont essentiellement des sols développés en climat tropical ; en France, nous trouvons quelques sols de cette catégorie soit sur argiles à silex, soit sur des niveaux sédimentaires bien particuliers.

Nos conclusions confirment que l'organisation des cristallites de la kaolinite est fondamentalement différente quand on considère l'état ferruginisé et l'état non ferruginisé. Dans le premier cas, la stabilité du corps poreux est si parfaite que le matériau n'a pas le comportement habituel d'une argile (phénomène de pseudo particulation, cf A. CHAUVEL, 1975) ; dans le second cas, l'argile "retrouvée" ses propriétés, avec l'apparition des phénomènes de gonflement et de retrait et l'évolution concomitante de la porosité. Il est bien évident que dans de telles conditions, le régime hydrique des sols sera fort différent ; ainsi, les phénomènes de prise en masse à l'état sec et ceux correspondant au passage de l'état plastique à l'état humide, sont particulièrement marqués dans le sol kaolinitique non ferruginisé.

### - Sols montmorillonitiques \*

Les possibilités de gonflement et de retrait étant particulièrement développés dans le cas de ces argiles, la présence de celles-ci dans un sol conduit nécessairement à un comportement particulier dès lors que leurs teneurs dépassent 30 à 40 %. Ce comportement, qui est très connu, se traduit en saison sèche par l'apparition d'une cohésion particulièrement importante et en saison humide par la manifestation d'une grande plasticité ; d'où les difficultés quasi insurmontables que peuvent présenter ici les opérations de travail du sol.

Ajoutons que l'existence de ce comportement contrasté est en même temps favorable au développement dans le profil pédologique des structures "verticales" si caractéristiques d'un certain nombre de sols argileux que l'on désigne de ce fait sous le nom de vertisols.

---

\* Signalons que la plupart de ces argiles sont probablement des argiles de néogène.

- Sols contenant des argiles à morphologie d'illite

Nous abordons ici le problème des sols dont les argiles sont des illites ou des dérivés de l'illite : minéraux de transformation plus ou moins interstratifiés. Ces sols sont très fréquents en France où ils sont particulièrement bien développés sur limons des plateaux.

D'après nos résultats expérimentaux, les matériaux calcaires qui correspondent en pédologie à des sols saturés présentent des unités morphologiques constituées et organisées de telle manière que les phénomènes de gonflement et de retrait sont nécessairement limités. Sur le plan pédologique, ces phénomènes se traduisent donc par l'individualisation d'une structure stable, la possibilité d'une circulation aisée des fluides et enfin par le développement d'une activité biologique intense.

Nous ne disposons pas de données expérimentales pour d'autres conditions physicochimiques. Mais, il apparaît certain, si l'on se réfère par exemple aux observations pédologiques et agrotechniques habituelles (citons par exemple S. HEMLIN, 1939 et H. JANAGIE, 1973), que l'élimination du calcium liée à la désaturation du complexe d'échange des argiles conduit à une structure instable, à des conditions de travail difficiles et sur le plan pédologique à la mise en jeu à la longue d'un phénomène "de lessivage" (sorte d'entraînement particulière de l'argile vers les horizons profondes) avec toutes les conséquences que cela comporte : imperméabilisation des horizons inférieurs, engorgement, asphyxie et développement des processus de réduction, enfin "dégradation" physicochimique des constituants minéraux. Or, une telle situation en milieu saturé semble devoir résulter de la suppression des liaisons existantes entre les unités morphologiques de l'illite et ainsi à la mise en oeuvre de phénomènes de gonflement et de retrait beaucoup plus importants que dans le cas précédent (milieu saturé).

On entrevoit ainsi comment les conditions physicochimiques du milieu, en relation avec le complexe d'échange des argiles, conditionnent bien encore d'autres caractéristiques telles la présence au sein

du plasma argileux, de constituants secondaires tels que hydroxydes, carbonate de calcium, matière organique... semblent devoir intervenir sur l'organisation de l'assemblage argileux, le comportement des sols et en définitive la différenciation pédologique des profils. C'est donc à l'étude de ces différents problèmes et à l'examen de telles interactions que devront être consacrés les travaux ultérieurs relatifs à ce domaine.

\*  
\* \*  
\*



## B I B L I O G R A P H I E

\*\*\*

- BANIN A. et LAHAV N. (1968) - Optical study of particle size of montmorillonite with various Adsorbed Cations - Nature vol. 217 - pp. 1146-1147
- BANIN A. et LAHAV N. (1968) - Particle size and optical properties of montmorillonite in suspension. Israël Journal of chemistry, vol.6, pp.235-250
- BARSHAD I. (1953) - Adsorptive and swelling properties of clay water system. Clays and clay Technology Bull. 169, pp.70-77
- BLACKMORE A.V. et MILLER R.D. (1961) - Tactoid size and osmotic swelling in calcium montmorillonite. Soil Science Soc. Proc. pp. 169-173
- BOLT G.H. (1956) - Physicochemical analysis of the compressibility of pure clays - Geotechnique (8) pp.86-93
- BRINDLEY G.W. (1953) - An X ray method for studying orientation of micaceous minerals in shales, clays, and similar material Min. Mag. 30 (71-73)
- BRINDLEY G.W. (1966) - Discussions and recommendations concerning the nomenclature of clay minerals et related phyllosilicates Clays and clay minerals 14, pp.27-34
- BRINDLEY G.W. et KURTOSY (1961) - Quantitative determination of kaolinite by X ray diffraction. Am. Mineral 46 pp.1205-1215
- CHAUVEL A. (1975) - Thèse à paraître
- CALVET R. (1972) - Hydratation de la montmorillonite et diffusion des cations compensateurs - Thèse Fac. Sci. Paris
- DAVIDTZ J.C. et LOW P.F. (1970) - Relation between crystal - lattice configuration and swelling of montmorillonites - Clays and clay minerals, vol.18 pp. 325-332
- DIAMOND S. (1970) - Pore size distribution in clays - Clays and clay minerals, vol. 18, pp. 7-23
- DIAMOND S. (1971) - Microstructure and pore structure of impact-compacted clays - Clays and clay Minerals, vol. 19, pp. 239-249
- DOWDY R.H. et LARSON W.E. (1971) - Tensile strength of montmorillonite. Soil Sc. Soc. Amer. Proc. vol 35, p.1010-1014
- EDWARDS D.G. et QUIRK J.P. (1962) - J. colloid Sci. 17, p.872, (cité par BANIN et LAHAV (1968) dans Israël Journal of chemistry v.6, p.257)



- EMERSON W.V. (1962) - The swelling of Ca-Montmorillonite due to water absorption. 2 - water uptake in the liquid phase - J. Soil Science 13, p.40
- FIES J.C. (1971) - Recherche d'une interprétation texturale de la porosité des sols. Ann. Agron. 22 (6) 655-685
- FLEURENCE A. et NICOLAS J. (1964) - Observations sur la notion d'ordre et de désordre de certains minéraux du groupe de la kaolinite - G F A, Tome XIV, série 9, pp. 149-166
- FOSTER M.D. (1955) - The relation between composition and swelling in clays. Clays and clay Min. (3) pp. 296-316
- FRIPIAT J., CHAUSSIDON J. et JELLI A. (1971) - Chimie - physique des phénomènes de surface. Applications aux oxydes et aux silicates. 387 p. Masson édit.
- GABIS V. (1958) - Etude préliminaire des argiles oligocènes du Puy en Velay (Haute Loire) Soc. Franç. Min. Cristal. (51) pp.183-185
- GILLOTT J.B. (1968) - Clay in engineering geology. 296 p. Elsevier publishing Co
- GRIM R.E. (1953) - Clay mineralogy - Mc Graw-Hill éditeur 384 p.
- HALLAIRE M. (1953) - Diffusion capillaire de l'eau dans le sol et répartition de l'humidité en profondeur sous sols nus et cultivés - Ann. Agron. Série A II, pp. 143-244
- HALLAIRE M. et BALDY Ch. (1963) - Potentiel matriciel de l'eau dans le sol et tension superficielle de l'eau - Ann. Agric 14 (4) pp.381-391
- HENIN S. (1973) - Cours de physique du sol (inédit)
- HENIN S. et BURGEVIN H. (1939) - Dix années d'expériences sur l'action des engrais sur la composition et les propriétés d'un sol de linon - Ann. Agron. Tome 9 - Nlle série pp. 771-779
- HENIN S., CHAUSSIDON J. et CALVET R. (1969) - Surface, forme et croissance des minéraux des argiles. Bull. Gr. Fr. Argile Tome XXI, fasc. 1, pp. 31-45
- HOFMANN U., FAHN R. et WEISS A. (1952) - Thixotropy and intracrystalline swelling - Clay Minerals Bull. vol. 2 N°10 pp. 70-76
- ISAMBERT M., GOBELLOT Th. et BOURLET M. - Carte pédologique de Châteaudun au 1/100.000è (à paraître)
- JAMAGIE M. (1973) - Contribution à l'étude pédogénétique des formations loessiques du Nord de la France - Thèse à la faculté des Sciences Agronomiques de l'Etat (Gembloux) Belgique
- KRUYT H.R. (1952) - Colloid Science - Elsevier publishing Co édit 389 p.

- LIPPMANN F. (1970) - Functions describing preferred orientation in flat aggregates of flake-like clay minerals and in other axially symmetric fabric. *Contr. Mineral. and Petrol* 25, (77-94)
- MACKENZIE R.C. (1965) - Nomenclature sub. committee of C.I.P.E.A. *clay Min. Bull.* 6, p.123-126
- MAMY J. (1968) - Recherches sur l'hydratation de la montmorillonite propriétés diélectriques et structure du film d'eau - Thèse Fac. Sciences Paris
- MATIN R.T. (1966) - Quantitative fabric of wet kaolinite - *Clays and clay minerals* (14) 271-287
- MATHIEU C. et DE CONINCK F. - Caractérisations physicochimiques et sédimentologiques des craies Turoniennes et Coniaciennes de Thierarche et du Marlois (Nord-est du Bassin de Paris) *Bull. Inf. Géo. Bass. Paris* (1972) 34 (3-14)
- MERING J. (1946) - The hydration of montmorillonite *Disc. Faraday Soc.* 32 B p. 205
- MERING J. (1962) - Gonflement, dispersion et hydratation des argiles. *Bull. Gr. Fr. des Argiles* 13 p.115
- MERING J. et OBERLIN (1971) - The smectites - In the Election-Optical investigation of Clays 193, *Mineralogical Society London Ed.* 135-145, 220
- M'EWEN M.B. et MOULD D.L. (1957) - The gelation of montmorillonite Part 2 : The nature of the interparticle forces in sols of Wyoming bentonite - *Trans. Faraday Soc.* 53 p.548-564
- MICHAELS A.S. et BOLGER J.C. (1964) - Particle interactions in aqueous kaolinite dispersions-I et EC Fundamentals, vol 3, pp 14-20
- MONNIER G., STENGEL P. et FIES J.C. (1973) - Une méthode de mesure de la densité apparente de petits agglomérats terreux. Application à l'analyse de systèmes de porosité du sol. *Ann. Agron.* 24 (5) p.533
- NORRISH K. (1954) - Crystalline swelling of montmorillonite - *Nature*, vol. 173, p.255
- OBERLIN A. et MERING J. (1962) - Observations en microscopie et microdiffraction électroniques sur la montmorillonite Na - *J. Microscopie* (1) pp.107-120
- O'BRIEN N.R. (1971) - Microstructure of a laboratory sedimented flocculated illite sediment. *Canadian geotechnical journal*, vol. 9 pp. 120-122
- O'BRIEN N.R. (1971) - Fabric of kaolinite and illite floccules. *Clays and clay Minerals* vol. 19 pp.353-359
- PEDRO G. (1967) - Commentaires sur la classification et la nomenclature des minéraux argileux. *Bull. Gr. Fr. Argiles* 19, p.69-86

- POMEROL Ch. (1967) - Les minéraux argileux dans le tertiaire du Bassin de Paris. Problèmes d'origine et de genèse. Bull. Groupe Fr. Argiles Tome XIX Fasc. 1 pp.115-121
- PROST R. (1975) - Etude de l'hydratation des argiles : interaction eau-minéral et mécanisme de la rétention de l'eau. Thèse fac.Sciences Paris
- QUIRK J.P. (1968) - Particle interaction and soil swelling. Israël Journal of chemistry, vol.6, n°3, p.213-234
- ROBERT M. et TESSIER D. (1974) - Méthode de préparation des argiles des sols pour études minéralogiques - Ann. Agro. 25, (6) pp.859-882
- ROBERT M. (1972) - Transformation expérimentale de glauconite et d'illites en smectites C.R. Acad. Sc. Paris T.275, série D, pp.1319-1322
- ROBERT M., ISAMBERT M. et TESSIER D. (1973) - Etude et premières interprétations de l'évolution des glauconites dans les sols. C.R. Acad. Sc. Paris t.277, série D, pp.1129-1132
- SCHOFIELD R.K. et SAMSON H.R. (1953) - The deflocculation of kaolinite suspensions and the accompanying change over from positive to negative chloride adsorption. Clays minerals Bull. vol 2, n°9 p.45
- SCHOFIELD R.K. , SAMSON H.R. (1954) - Flocculation of kaolinite due to the attraction of oppositely charged crystal charges - Disc. Faraday Soc.1 135-145-220
- SEDDOH F.K. et PEDRO G. (1974) - Caractérisation des différents stades de transformation des biotites et biotites chloritisées dans les arènes granitiques du Morvan. Conséquences minéralogiques et géochimiques sur l'évolution des micas dans les conditions de surface du globe. Groupe Fr. des Argiles T XXVI fasc.1 pp.107-124
- SHAINBERG I., BRESSLER E. et KLAUSNER K. (1971) - Studies on Ca/Na montmorillonite systems, 1. The swelling pressure - Soil Science Vol. III n°4 p. 214-219
- SHAINBERG I. et KEMPER W.D. (1966) - Electrostatic forces between clay and cations as calculated and inferred from electrical conductivity. Clays and clay Min. XIV pp.117-132
- SILLS I.D., AYLMOORE L.A.G. et QUIRK J.P. (1973) - An analysis of pore size in illite-kaolinite mixtures. Journal of Soil Science Vol.24 n°4, p. 480-490.
- TAYLOR R.M. et NORRISH K. (1966) - The measurement of orientation distribution and its application to quantitative X ray diffraction analysis - Clays and clay Minerals (6) p.127
- VAN DER MAREL H.W. (1962) - Quantitative determination of kaolinite by X ray diffraction. Am. Mineral 46 p.1205-1215
- VAN OLPHEN H. (1959) - Forces between suspended particles Part. II : Ca bentonite Clays and clay Minerals nat. conf. 6ème Conf. pp.196-206

VAN OLPHEN H. (1963) - An introduction to clay colloïd chemistry Interscience Publishersédit. 300 p.

VAN OLPHEN H. (1972) - Particle growth in suspensions - Organisé par The Society of chemical Industry, Colloïd and surface chemistry group à Brunel University - Edité par A.C. SMITH, Academic Press (1973)

YONG R.N. et WARKENTIN B.P. (1975) - Soil Properties an behaviour 440 p. Elsevier Scientific Publishing .

## TABLE DES MATIERES

	<u>Pages</u>
PREMIERE PARTIE : Présentation des matériaux et des méthodes	1
A - Caractéristiques générales des matériaux	1
I - Structure et mode d'association des feuillets d'argile	1
1 Structure du feuillet élémentaire	1
2 Mode d'association des feuillets élémentaires entre eux	2
II - Choix des matériaux étudiés	8
1 Argiles rencontrées dans les sols	8
2 Caractéristiques générales de ces diverses argiles	9
3 Argiles utilisées dans ce travail	9
III - Caractères généraux des minéraux étudiés	10
1 Etude par la diffraction des rayons X et à l'aide des méthodes thermiques	10
2 Etude de la constitution chimique : établissement de la formule structurale et évaluation de la capacité d'échange en cations	17
3 Détermination des surfaces spécifiques	18
a) Mesure de la surface externe par la méthode BET	19
b) Conséquences : évaluation de la dimension moyenne des particules primaires	19
c) Surface totale - surface interne	20
4 Caractères morphologiques	20
a) Kaolinite	
b) Illite	
c) Montmorillonite	
d) Argile H.B.	
B - Préparation des argiles en vue des études sur le phénomène de retrait	27
1 Elimination des impuretés et séparation des fractions argileuses	27
2 Problèmes posés par la dispersion des argiles	27

3	Choix d'un cation saturant la capacité d'échange	28
4	Extraction de l'argile	29
5	Conditions de conservation des échantillons	30
6	Conclusion et plan des essais	30
C -	Caractérisation hydrique des pâtes argileuses et définition du protocole expérimental	32
1	Paramètres caractérisant l'état et la circulation de l'eau dans un corps poreux	32
2	Définition du potentiel matriciel - Notion de pF	35
3	Mesure du potentiel matriciel	36
a)	Extraction de l'eau sous pression : principe de l'appareil de Richards	36
b)	Utilisation des techniques hygroscopiques	38
4	Préparation des gâteaux d'argile.	41
5	Conclusion et présentation d'ensemble	42
D -	Méthodes d'étude des matériaux	44
I -	Méthode d'étude des caractéristiques globales et externes des échantillons	44
1	Mesure du volume apparent	44
a)	Présentation de la méthode	44
b)	Application à des échantillons non saturés	45
c)	Cas des échantillons saturés	45
d)	Détail des manipulations	46
e)	Interprétation des mesures	49
2	Problèmes posés par la détermination de la densité réelle	50
3	Mesure des paramètres du volume	51
II -	Discussion à propos de la précision et de la validité des mesures des caractéristiques globales et externes des échantillons	51
1	Distribution des mesures du volume et de la teneur en eau	52



2 Sources d'erreurs systématiques sur les composants du volume	52
3 Discussion à propos de la relation contrainte-teneur en eau	53
<b>III - Caractérisation de l'état d'organisation interne à l'aide des méthodes de visualisation directe</b>	<b>53</b>
1 Loupe binoculaire	54
2 Microscope polarisant	54
3 Microscope électronique à balayage	55
4 Conclusion	55
<b>IV - Caractérisation de l'état d'organisation interne : mise au point d'une méthode basée sur la diffraction des rayons X</b>	<b>56</b>
1 Principe de la méthode : diffraction des rayons X par un échantillon d'argile orientée	56
a) Cas général : étude et signification d'un diagramme Debye Scherrer	
b) Analyse de l'orientation au sein d'une poudre microcristalline	57
c) Problèmes résultant des phénomènes d'absorption	58
2 Réalisation pratique et technique d'utilisation des échantillons	60
a) Dispositif de diffraction X adopté	60
b) Préparation et présentation des échantillons à analyser	63
c) Choix de la raie de référence	65
d) Etude des spectres d'argile orientée	66
. Diffraction par un cristallite d'argile	66
. Diffraction par un agrégat d'argile orientée	68
e) Densitométrie	74
f) Présentation des résultats	75
<b>DEUXIEME PARTIE : Etude du comportement spécifique des quatre matériaux argileux</b>	
<b>A - Kaolinite</b>	<b>77</b>
1 Rappels sur les propriétés générales du matériau utilisé	77
2 Mesures globales caractérisant le retrait	77
a) Relation volume apparent - teneur en eau	79
b) Relation contrainte - teneur en eau	81
c) Etudes des paramètres du retrait	83
3 Etude de l'organisation interne à l'aide des rayons X	85



4 Données sur l'observation directe de l'organisation interne	89
5 Description de l'évolution de l'organisation du matériau au cours du retrait	93
a) Etat d'organisation du matériau consécutif à la préparation des échantillons	93
b) Evolution de l'organisation	95
 B - Montmorillonite	 98
1 Rappels sur les propriétés générales du matériau	98
2 Mesures globales caractérisant le retrait	98
a) Relation volume-teneur en eau	99
b) Relation contrainte-teneur en eau	102
c) Etude des paramètres du retrait	105
3 Etude de l'organisation interne à l'aide des rayons X	108
a) Etude de l'orientation	109
b) Etude de l'hydratation interfeuillet	113
4 Données sur l'observation directe de l'organisation interne	115
5 Description de l'évolution de l'organisation du matériau au cours du retrait	120
a) Etat d'organisation du matériau consécutif à la préparation des échantillons	120
b) Evolution de l'organisation	124
- utilisation d'un modèle cubique	125
- mise en place et évolution de l'organisation tridimensionnelle isotrope	126
- passage à une organisation anisotrope	129
 C - Illite	 132
1 Brefs rappels sur les propriétés générales du matériau utilisé	132
2 Mesures globales caractérisant le retrait	132
a) Relation volume - teneur en eau	135
b) Relation contrainte - teneur en eau	136
c) Etude des paramètres du retrait	136
3 Etude de l'organisation interne à l'aide de la diffraction des rayons X	140

4 Données sur l'observation directe de l'organisation interne	144
a) Examen du matériau au microscope électronique à balayage	144
b) Examen de la suspension au microscope électronique à transmission	149
5 Description de l'évolution de l'organisation du matériau au cours du retrait	151
a) Etat d'organisation du matériau consécutif à la préparation des échantillons	151
b) Evolution de l'organisation	153
c) Genèse de l'organisation concentrique	155
d) Examen de la porosité à la limite de retrait	156

#### D - Horizon B

1 Rappels sur les propriétés générales du matériau utilisé	158
2 Mesures globales caractérisant le retrait	158
a) Relation volume - teneur en eau	159
b) Relation contrainte - teneur en eau	159
c) Evolution des paramètres caractérisant le retrait	164
3 Etude de l'organisation interne à l'aide de la diffraction des rayons X	167
4 Etude par les méthodes d'observation directe	168
5 Histoire de retrait de l'argile Horizon B	170
a) Etat d'organisation consécutif à la préparation des échantillons	170
b) Evolution de l'organisation	173

#### TROISIEME PARTIE : Organisation et comportement des matériaux argileux en cours de dessiccation (phénomène de retrait)

A - Type d'organisation et son évolution en relation avec le comportement expérimental des 4 argiles caliques étudiées	176
I - Etat d'organisation de la pâte argileuse	176
1 Constitution de l'unité morphologique	176
2 Mode d'assemblage entre les unités morphologiques	178
a) organisation isotrope et anisotrope	178
b) évolution des organisations isotropes : utilisation d'un modèle cubique	180
3 Conclusions	182

II - Etude de l'évolution de l'organisation des minéraux argileux en fonction de la teneur en eau - Conséquences sur le comportement des argiles	183
1 Mise en évidence des forces intervenant au sein du corps poreux	183
a) Intervention des phénomènes capillaires	183
b) Théorie de la couche diffuse : intervention des phénomènes osmotiques	184
2 Etude de l'évolution des organisations au cours des différentes phases du retrait	188
a) Evolution des minéraux argileux purs aux fortes teneurs en eau	191
b) Evolution des argiles pures aux faibles teneurs en eau	193
3 Evolution des mélanges argileux	199
a) Principaux types morphologiques - Problèmes posés par les argiles expansibles de transformation	199
b) Comportement d'un mélange argileux illite-kaolinite	202
4 Conséquences : relations entre la constitution morphologique et le comportement des argiles	203bis
a) Fortes teneurs en eau	203bis
b) Porosité texturale	205
B - Regards et perspectives générales sur l'organisation et le comportement des différentes argiles en fonction des conditions du milieu pédologique	206
1 Kaolinite	207
a) Propriétés des suspensions	207
b) Types d'organisation et son évolution aux plus faibles teneurs en eau	208
2 Smectites	210
a) Relation entre l'hydratation de la montmorillonite et quelques caractéristiques structurales	210
b) Rôle du milieu physicochimique	211
c) Organisation et comportement aux faibles teneurs en eau	213
3 Argiles à morphologie d'illite	215
4 Essai de synthèse sur la stabilité des assemblages argileux dans le milieu superficiel	216
Conclusions Générales	220
Bibliographie	227