

# Caractérisation d'un matériau poreux par l'utilisation d'un fluide viscoplastique de type Robertson-Stiff

A. OUKHLEF<sup>1</sup>, A. DESPEYROUX<sup>2</sup>, S. CHAMPMARTIN<sup>3</sup>, A. AMBARI<sup>3</sup>

1. USMS, LSCAE, École Supérieure de Technologie, BP : 591, 23000 Béni Mellal, Maroc, [a.oukhlef.est@usms.ma](mailto:a.oukhlef.est@usms.ma)
2. Royal Military College of Canada, Kingston, Ontario, K7K 7B4, Canada, [antoine.despeyroux@hotmail.com](mailto:antoine.despeyroux@hotmail.com)
3. Arts et Métiers ParisTech, 2 bd du Ronceray, 49035 Angers, France, [stephane.champmartin@ensam.eu](mailto:stephane.champmartin@ensam.eu) / [abdelhak.ambari@ensam.eu](mailto:abdelhak.ambari@ensam.eu)

## Résumé

Cette communication présente une nouvelle méthode pour caractériser la topologie des matériaux poreux en termes de distribution de tailles de pores (DTP) qui constitue une information importante sur le matériau poreux (porosité, perméabilité...). Cette approche proposée repose sur les propriétés rhéologiques et particulièrement sur l'existence d'un seuil d'écoulement des fluides viscoplastiques s'écoulant à travers l'échantillon poreux. Nous allons montrer que par une simple mesure du débit total de fluide en fonction du gradient de pression imposé, il est possible de déterminer la DTP. Dans notre approche, le modèle de Carman-Kozeny a été employé. Cette nouvelle technique a été validée analytiquement et numériquement sur différents types de distributions (gaussienne unimodale ou multimodales). Elle a été appliquée avec succès aux fluides viscoplastiques de type Robertson-Stiff. Contrairement aux autres méthodes complexes, onéreuses et parfois toxiques, cette nouvelle technique se distingue par sa simplicité, son faible coût et sa non-toxicité.

**Mots clefs :** *Matériaux poreux, distribution de tailles de pores, fluides à seuil*

## 1. Introduction

La forte hétérogénéité des matériaux poreux naturels (sols, roches poreuses, bois...) ou industriels (bétons, poudres, mousse métallique, céramique poreuse, ciment, tissu...) et la grande dépendance de leurs propriétés de transport de la taille des pores qui les constituent, ont motivé un grand intérêt pour une bonne caractérisation géométrique des matériaux poreux. En effet, depuis Darcy [1], les phénomènes de transports de quantité de mouvement, de chaleur ou de masse au sein des pores continuent à stimuler une forte activité de recherche (pétrole, séquestration de CO<sub>2</sub>, stockage d'énergie...). L'objectif principal de ce travail est de proposer une nouvelle méthode non-toxique, simple et économique, contrairement aux autres procédés utilisés actuellement. Parmi les plus employés pour déterminer la DTP, on peut citer celles basées sur l'existence d'un seuil en dessous duquel les pores ne peuvent être envahis : (i) la porosimétrie par injection de mercure [2] qui exploite le

caractère non mouillant du mercure, associé à sa forte tension superficielle. Pour une pression d'injection donnée, seule la fraction des pores dont le diamètre a une taille supérieure à une valeur critique, donnée par la loi de Laplace, sera envahie par le mercure. Quoique très courante, cette technique est sujette à quelques critiques notamment la nocivité des vapeurs du mercure ; (ii) la méthode de sorption ou adsorption isotherme [3] fondée sur l'utilisation de la condensation capillaire. Il existe d'autres techniques qui permettent de caractériser la DTP [4,5]. Par contre elles sont plus difficiles à mettre en œuvre et sont onéreuses : la thermoporométrie, la diffusion aux petits angles, RMN... D'autres méthodes destructives, comme la technique de la stéréologie, ou l'étude directe de la géométrie des sections planes d'un milieu poreux sont aussi utilisées.

A l'instar des techniques précitées, notre nouvelle approche est basée sur l'injection d'un fluide à seuil de type Robertson-Stiff au sein du milieu poreux (méthode invasive). L'esprit de la méthode suggérée consiste à utiliser l'effet du seuil rhéologique pour scanner les différentes échelles de pores pour déterminer sa DTP. Le concept général sur lequel est basée cette technique, est qu'un pore ne peut être envahi par un tel fluide que lorsque le gradient de pression qu'on lui impose dépasse une valeur critique, qui dépend de la valeur du seuil défini par la loi de comportement du fluide. Ainsi, on assiste à une invasion des pores de diamètre de plus en plus petit, avec l'augmentation du gradient de pression. De cette manière, tous les pores peuvent être «scannés» et par conséquent leur DTP déterminée. Ce travail consiste donc à résoudre le problème inverse qui se réduit à la détermination de la distribution de la taille de pores d'un milieu poreux, par la simple mesure de l'évolution du débit volumique d'un fluide à seuil (de type Robertson-Stiff) qui le traverse, en fonction du gradient de pression qui lui est imposé :  $Q = f(\nabla P)$ .

L'applicabilité de cette technique a été testée avec succès sur des distributions gaussiennes unimodales, bi ou trimodales, en utilisant dans un premier temps les fluides de type Bingham et Casson [6,7]. Dans un deuxième temps, puisque la plupart des fluides réels à seuil ne sont pas parfaitement idéals, nous avons généralisé cette méthode aux fluides viscoplastiques plus complexes tels que des fluides de type Herschel-Bulkley [7]. Dans cette même catégorie de fluides nous allons donner les résultats concernant le modèle de type Robertson-Stiff en

présentant dans cette communication l'expression analytique de la solution du problème inverse provenant de la résolution de l'équation intégrale associée décrite ci-dessous. Ainsi nous pouvons calculer la densité de probabilité  $p(r)$  en fonction des dérivés partielles successives de la courbe caractéristique « $Q = f(\nabla P)$ ».

## 2. Présentation du modèle

### 2.1 Formulation du problème et solution

D'après Carman-Kozeny [8,9], les matériaux poreux peuvent être décrits par un modèle de faisceaux de tubes capillaires parallèles de rayons  $r$  répartis selon une densité de probabilité  $p(r)$ . Ce modèle, introduit initialement par Purcell [10] continue d'être utilisé dans de nombreuses études portant sur les milieux poreux. Cette construction de pores qui ne tient pas compte de la tortuosité, de la connectivité des pores, des bras morts, de la forme et du changement de section le long d'un pore parcouru par le fluide, n'est qu'apparemment critiquable car des corrections tenant compte de ces paramètres peuvent être introduites par la suite pour corriger cette modélisation. Dans notre étude on ne tient pas compte de la tortuosité qui n'affecte la courbe caractéristique que par une augmentation de la longueur des pores [11] et non la DTP normalisée. Dans ces conditions, l'expression du débit total  $Q = f(\nabla P)$  à travers ce modèle de capillaires, soumis à un gradient de pression  $\nabla P$ , en fonction du débit élémentaire  $q(\nabla P, r)$  dans chaque capillaire et de la densité de probabilité  $p(r)$  constitue une équation intégrale linéaire de type Volterra de première espèce pour déterminer  $p(r)$  :

$$Q(\nabla P) = \int_{r_0 = \frac{2\tau_0}{\nabla P}}^{\infty} q(\nabla P, r) p(r) dr \quad (1)$$

Dans le cas d'un fluide viscoplastique de type Robertson-Stiff, nous avons besoin de l'expression analytique qui donne le débit élémentaire  $q(\nabla P, r)$  de l'écoulement de ce fluide à seuil dans un capillaire dont la loi de comportement s'écrit comme suit :

$$\begin{cases} \tau_{r,z} = k \left( \left( \frac{\tau_0}{k} \right)^{1/n} + \left| \frac{\partial u_z}{\partial r'} \right| \right)^n & \text{pour } \tau_{r,z} > \tau_0 \\ \frac{\partial u_z}{\partial r'} = 0 & \text{pour } \tau_{r,z} \leq \tau_0 \end{cases} \quad (2)$$

où  $\tau_{r,z}$  est la contrainte viscoplastique,  $(\partial u_z / \partial r')$  le taux de déformation,  $\tau_0$  la contrainte seuil du fluide,  $k$  la consistance du fluide,  $n$  l'indice de fluidité et  $r'$  le rayon courant dans le tube. Le noyau de l'équation (1) est alors donné par l'expression suivante :

$$\begin{cases} q(\nabla P, r, n) = \frac{\pi r^3}{(1+3n)} \left( \frac{\nabla P r}{2k} \right)^{1/n} \left( n - \frac{(1+3n)}{3} \left( \frac{\tau_0}{r} \right)^{1/n} + \frac{1}{3} \left( \frac{\tau_0}{r} \right)^{3+1/n} \right) & \text{pour } r > r_0 \\ q(\nabla P, r, n) = 0 & \text{pour } r \leq r_0 \end{cases} \quad (3)$$

où  $r_0$  est le rayon limite en dessous duquel le fluide ne s'écoule plus. C'est aussi le rayon de la zone centrale du fluide en écoulement «bouchon». Partant de ce noyau et de la courbe caractéristique  $Q(\nabla P)$ , la résolution de l'éq.1 qui donne l'expression de  $p(r)$  s'obtient analytiquement en fonction des dérivés partielles successives du débit total  $Q(\nabla P)$  par rapport au gradient de pression qui s'écrit comme suit : (où  $n \in \mathfrak{R}$ )

$$p(r) = \frac{2^5 n k^{1/n}}{16 \pi \tau_0^{(1-n)/n} r^5} \left\{ 4 \left( \frac{n-1}{n} \right) \frac{\partial}{\partial \nabla P} + \left( \frac{6n-1}{n} \right) \nabla P \frac{\partial^2}{\partial \nabla P^2} + (\nabla P)^2 \frac{\partial^3}{\partial \nabla P^3} \right\} Q \Big|_{\nabla P = \frac{2\tau_0}{r}} \quad (4)$$

Il est à remarquer que pour  $n=1$  le modèle de Robertson-Stiff se réduit à celui de Bingham et l'expression (4) se réduit à celle obtenue par Ambari et al [12].

### 2.2 Inversion adimensionnelle et validation

La vérification de la formule d'inversion présentée ci-dessus (éq.4) nécessite une normalisation des équations qui minimise le nombre de variables. Pour cela, nous avons normalisé le rayon  $r$  par l'épaisseur du milieu poreux  $L$  prise comme échelle de longueur caractéristique et  $\tau_0/L$  comme échelle caractéristique du gradient de pression. La densité de probabilité sans dimension de la taille normalisée de pores dont le rayon normalisé est compris entre  $r^+$  et  $r^+ + dr^+$  pour  $n \in \mathfrak{R}$  devient donc :

$$p^+(r^+) = \frac{n(\nabla P^+)^5}{16(1+3n)2^{1/n} He^{(R-S)}} \left\{ 4 \left( \frac{n-1}{n} \right) \frac{\partial Q^+}{\partial \nabla P^+} + \left( \frac{6n-1}{n} \right) \nabla P^+ \frac{\partial^2 Q^+}{\partial \nabla P^{+2}} + (\nabla P^+)^2 \frac{\partial^3 Q^+}{\partial \nabla P^{+3}} \right\} \Big|_{\nabla P^+ = \frac{2}{r^+}} \quad (5)$$

où le nombre de Hedström correspondant au modèle de Robertson-Stiff s'écrit :

$$He^{(R-S)} = \frac{\rho \tau_0^{(2-n)/n} L^2}{k^{2/n}} \quad (6)$$

où  $\rho$  est la masse volumique du fluide. Pour montrer l'efficacité de cette méthode, nous adoptons la stratégie suivante. En effet, dans une première étape, nous supposons connue la DTP. Par exemple, le cas d'une distribution gaussienne bimodale de valeurs moyennes  $m_1$  et  $m_2 = 2m_1$  et de même écart-type  $\sigma$  connus. La figure 1 montre le débit total normalisé en fonction du gradient de pression normalisé imposé à l'écoulement du fluide de Robertson-Stiff dans un milieu poreux ayant une distribution gaussienne bimodale fixée initialement. Cette courbe est obtenue dans le cas où  $He^{(R-S)} = 0,02$  et  $n = 0,5$ . Cette figure est caractérisée par une première

zone aux faibles gradients de pression pour lesquels le débit est nul. Au-delà d'un seuil critique le débit varie avec le gradient de pression. Dans une seconde étape, la distribution initialement introduite est ignorée et la courbe débit-gradient de pression donnée par le calcul initial (à la place de celle donnée par une expérience) est utilisée comme point de départ. L'équation 5 est appliquée à cette courbe caractéristique et la figure 2 ci-dessous est obtenue par inversion dans le cas de  $He^{(R-S)} = 0,02$  et  $n = 0,5$ , le premier ne dépend que des paramètres rhéologiques du fluide et de la taille de l'échantillon, le deuxième est l'indice de fluidité. Cette figure 2 montre une parfaite concordance entre la distribution gaussienne bimodale originale et la distribution calculée avec la relation obtenue à partir de l'équation 5.

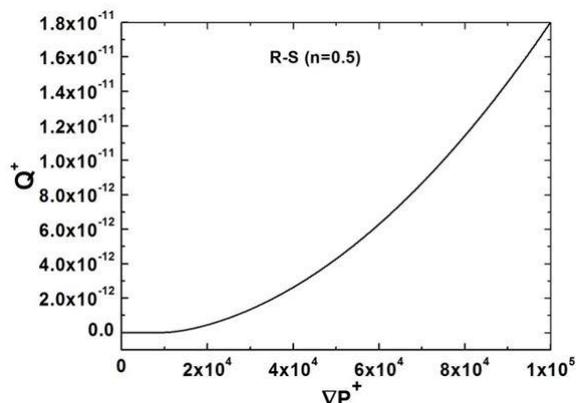


Figure 1 : Débit total en fonction du gradient de pression pour une distribution gaussienne bimodale et un fluide de type Robertson-Stiff

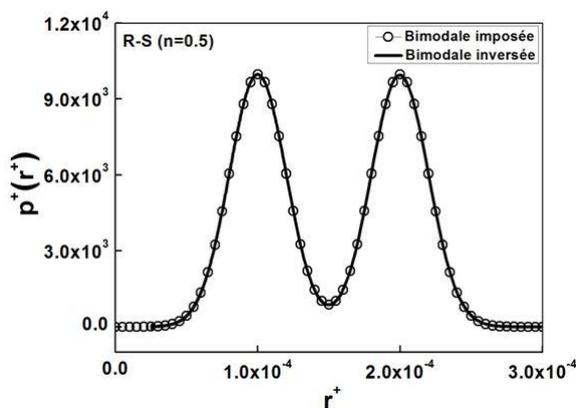


Figure 2 : Comparaison entre DTP initiale et celle calculée par l'éq.5

### 3. Conclusion

Ce travail présente une nouvelle méthode pour déterminer la distribution de tailles de pores des matériaux poreux. Elle est basée sur le modèle de Carman-Kozeny comme la plupart des techniques expérimentales alternatives. Cette méthode repose sur l'existence d'une contrainte seuil des fluides viscoplastiques. Ce seuil donne la possibilité de scanner la distribution des pores et conduit à une équation intégrale de type Volterra, dont le noyau est analytiquement et préalablement calculé. La

détermination mathématique de la fonction de densité de probabilité  $p(r)$  est rendue possible en utilisant les dérivées partielles du débit total de fluide à travers le milieu poreux en fonction du gradient de pression. Cette technique est testée avec succès pour les fluides de type Robertson-Stiff dans le cas des distributions gaussiennes mono, bi ou trimodales, toute autre distribution ou tout autre fluide à seuil pourrait être utilisé, néanmoins la résolution de l'équation de Volterra dans certains cas devrait se faire numériquement et non analytiquement. Enfin cette méthode pourrait ainsi devenir à l'avenir une méthode alternative, non toxique et peu coûteuse pour la caractérisation des matériaux poreux.

### Références

- [1] H. Darcy, *Les fontaines publiques de la ville de Dijon*, Paris : Victor Dalmont, 1856.
- [2] F. A. L. Dullien, *Porous Media- Fluid Transport and Pore Structure*, 2e éd., Academic Press, 1992.
- [3] E. P. Barrett, L. G. Joyner et P. P. Halenda, *The determination of pore volume and area distributions in porous substances computations from Nitrogen Isotherms*, Journal of American Chemical Society 73 (1951) 373-380.
- [4] M. Brun, A. Lallemand, J-F Quinson et C. Eyraud, *A new method for determination the simultaneous of the size and the shape of pores : the thermoporometry* Thermochim. Acta 21 (1977) 59-88.
- [5] H. Tamon et H. Ishizaka, *Saxs study on gelation process in preparation of resorcinol-formaldehyde aerogel*, Journal of Colloid and Interface Science 206 (1998) 577-582.
- [6] A. Oukhlef, S. Champmartin et A. Ambari, *Yield stress fluids method to determine the pore size distribution of a porous medium*, Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics 204 (2014) 87-93.
- [7] A. Oukhlef, *Détermination de la distribution de tailles de pores d'un milieu poreux*, Thèse de doctorat, ENSAM d'Angers, 2011.
- [8] P. C. Carman, *Fluid Flow through Granular Beds*, Chemical Engineering Research and Design 15a (1937) 150-166.
- [9] J. Kozeny, *Über kapillare Leitung des Wassers im Boden*, Stützungsberichte der Akademie der Wissenschaften in Wien 136(2a) (1927) 106-271.
- [10] W. R. Purcell, *Capillary pressure - Their measurement using mercury and the calculation of permeability therefrom*, Journal Petr. Tech., 1 (1949) 39-48.
- [11] A. E. Scheidegger, *The physics of flow through porous media*, 3e éd., University of Toronto Press, 1974.
- [12] A. Ambari, M. Benhamou, S. Roux et E. Guyon, *Pore size distribution in a porous medium obtained by a non-Newtonian fluid flow characteristic*, C. R. Acad. Sci. Paris, t. 311 série II (1990) 1291-1295.