

# Modèle pour l'estimation des propriétés de transfert des milieux poreux

L. ECAY<sup>a</sup>, D. GRÉGOIRE<sup>a</sup>, G. PIJAUDIER-CABOT<sup>a†</sup>

a. LFCR - UMR5150 - Université de Pau et des Pays de l'Adour, 1 Allée du Parc Montaury, 64600 ANGLET. email : [lionel.ecay ; david.gregoire ; gilles.pijaudier-cabot]@univ-pau.fr

† corresponding author

## Résumé :

*Un modèle capable de prédire les propriétés de transport en se basant uniquement sur la distribution de tailles de pores du matériau et sur les caractéristiques du fluide a été précédemment développé par les auteurs. Celui-ci allie une description macroscopique du flux de type Darcy avec une description microscopique combinée Poiseuille/Knudsen. Un réseau est ensuite généré suivant une approche stochastique, selon un procédé cohérent avec la porosimétrie par intrusion de mercure. Ce papier se propose d'étendre ce modèle aux milieux partiellement saturés et aux flux multiphasiques. La loi de Kelvin définit les tailles de pores envahies de liquide et des règles pour la prise en compte de la participation du réseau de pores aux flux de liquide et de gaz sont introduites. Le modèle étendu fournit des données cohérentes avec l'approche de Van Genuchten relative aux perméabilités au gaz et au liquide ainsi qu'avec les données expérimentales et fournit des informations sur l'évolution des perméabilités relatives au liquide et au gaz en fonction de l'endommagement.*

## Abstract : (16 gras)

*A model capable of predicting transport properties based solely on the pore size distribution of the material and the fluid characteristics has been developed previously by the authors. This model combines a Darcy description of the fluid flow at the macro-scale with a Poiseuille/Knudsen flow at the micro-scale. A stochastic approach is then used with regards to pore network generation, in a manner consistent with Mercury Intrusion Porosimetry (MIP). The present paper extends this model to multi-phase flow in an attempt to model partially saturated porous media. Kelvin's law defines which pore sizes are invaded with liquid and rules for accounting contributions of the pore network to liquid and vapour flows are introduced. The extended model provides data that are consistent with the Van Genuchten approach to liquid and gas relative permeabilities, compares well with experimental data and provides information on the evolution of the relative permeability to vapour and liquid water upon damage.*

**Mots clefs : transport, milieux poreux, saturation partielle, perméabilité relative**

## 1 Introduction

La catastrophe de Fukushima-Daïchi a mis en évidence de manière dramatique le rôle primordial des enceintes de confinement en béton précontraint lors d'accidents nucléaires. L'arrêt prolongé du circuit de refroidissement primaire engendré par l'action combinée du tremblement de terre et du tsunami qui ont frappé la région a démontré qu'un cas de figure où il serait impossible de sécuriser une centrale dans un délai raisonnable était possible. C'est ce qui a incité EDF à réviser le cas le plus grave de sa nomenclature à la hausse, de 24h à 2 semaines d'interruption du circuit de refroidissement primaire. Un tel changement d'échelle temporel induit des variations de divers paramètres considérés constants lors d'un accident court (le profil de saturation d'un mur par exemple) ainsi que l'apparition de problématiques de fluage laissées de côté jusqu'alors. EDF a par conséquent décidé de lancer le projet "MAîtrise du Confinement d'une ENceinte en Accident" (**MACENA**), dont le but est d'évaluer l'étanchéité des enceintes de confinement sous des conditions d'accident sévère. La charge thermo-hygro-mécanique considérée dans ce projet comprend une température de 180 °C, une pression de 5 bar ainsi qu'une humidité relative de 100% durant deux semaines. Sous de telles conditions le béton se comporte comme un milieu poreux partiellement saturé et des modèles permettant d'évaluer ses propriétés de transfert ainsi que leur évolution dans le temps doivent être mis en place.

## 2 Modèle numérique

La modélisation des propriétés de transport des milieux poreux présente un intérêt majeur pour des champs d'application très variés, et diverses théories ont vu le jour. Le problème principal avec ces matériaux concerne leur caractérisation. La manière la plus juste de calculer leurs propriétés de transport serait la simulation numérique de flux dans un réseau poreux tridimensionnel obtenu par observation directe d'un échantillon. Cependant, malgré des progrès fulgurants durant les dernières décennies, la résolution minimale atteignable en imagerie 3D se situe autour du  $\mu\text{m}$ , tandis qu'une part significative de la porosité des milieux cimentaires se trouve en-deçà de ce seuil. La seule option restante en observation directe est alors l'imagerie bidimensionnelle, mais la reconstitution d'un réseau tridimensionnel de la taille du Volume élémentaire Représentatif (VER) à partir de données 2D ne peut pas être considérée comme de l'observation directe. C'est pourquoi une stratégie largement répandue dans l'étude des milieux poreux consiste à se tourner vers des moyens de caractérisation indirects. étant donné la large gamme de pores à prendre en compte pour pouvoir évaluer correctement la porosité des matériaux cimentaires, l'une des options existantes est la porosimétrie par intrusion de mercure (MIP), qui donne accès à la distribution de tailles de pores (PSD) du matériau, des mésopores aux microfissures. Le problème principal de cette méthode est que le volume des gros pores tend à être sous-estimé au profit des petits à cause de l'effet de bouteille d'encre. Pour le résoudre, deux cycles d'intrusion sont effectués, et seules les données issues du deuxième cycle sont prises en compte. Le volume aveugle est ainsi éliminé. Nous estimons que celui-ci n'est pas l'élément critique du flux et qu'il n'a donc en pratique pas d'effet mesurable sur les mesures de débit de fuite. C'est pourquoi ne pas en tenir compte n'entrave pas l'aptitude de notre modèle à reproduire les perméabilité apparente et intrinsèque, puisqu'il est généré selon une approche cohérente avec ce deuxième cycle d'intrusion de mercure.

Diverses approches ont été présentées pour prédire la perméabilité en utilisant des modèles de pores parallèles à partir des données expérimentales tirées de la porosimétrie au mercure. Kozeny (KOZENY 1927) et Carman (CARMAN 1937) ont proposé une loi simple identifiant un diamètre hydraulique critique et considérant l'ensemble de la porosité du matériau comme étant constituée de pores parallèles de diamètre identique. Garcia-Bengochea et al. (GARCIA-BENGOCHEA, ALTSCHAEFFL et LOVELL 1979) ont proposé une approche donnant de meilleurs résultats : un réseau parallèle comprenant diverses tailles de pores selon la fraction de la porosité totale associée à chacune. Divers auteurs ont également proposé des variantes pour tenir compte d'une certaine forme d'interaction entre les pores parallèles, ou bien ont proposé des pores de diamètre variable. Le modèle dont nous discutons ici est un modèle de pores parallèles à diamètre variable développé par Khaddour et al. (KHADDOUR, GRÉGOIRE et PIJAUDIER-CABOT 2014).

## 2.1 Modèle hiérarchique aléatoire

Ce modèle a initialement été développé avec deux objectifs principaux : être analytique et sans paramètres d'ajustement pour être prédictif, et être capable de tenir compte de l'endommagement dans le régime pré-pic. Le réseau que nous générons pour ce faire est une combinaison de fibres parallèles composées de divers diamètres, avec une règle d'assemblage assurant une certaine cohérence avec la technique d'intrusion de mercure qui est qu'un segment d'un diamètre donné ne peut s'arrimer qu'à un segment de diamètre égal ou supérieur. Ainsi les fibres sont-elles de diamètre dégressif et on n'atteint un diamètre plus faible qu'en étant passé par un diamètre plus grand, de la même manière qu'en porosimétrie mercure, il est considéré que le mercure n'atteint les plus petits pores qu'après être passé par les plus grands. La longueur totale de pore de chaque taille est calculée à partir des données expérimentales de PSD en supposant une géométrie cylindrique, puis ces longueurs sont discrétisées en courts segments. À chacun d'entre eux est assignée une probabilité de démarrer une nouvelle fibre ou de se connecter à une fibre existante disponible (figure 1). Le fait d'imposer qu'un segment ne se connecte qu'à un segment de diamètre égal ou supérieur filtre l'effet des gros pores dans un matériau non endommagé. Une fois qu'une fibre a atteint la longueur du matériau — qui est définie comme la racine cubique du volume de l'échantillon — ses propriétés de transfert sont calculées et la perméabilité globale mise à jour. Un nouveau segment est alors choisi puis placé de la même manière. Une fois un critère de convergence en perméabilité atteint, toutes les fibres inachevées sont séquentiellement complétées, puis les classes de pore restantes sont placées dans un réseau parallèle de fibres monodiamétrales.

La description à deux échelles du flux permet, à partir d'une description microscopique du flux comme une combinaison d'un flux visqueux de type Poiseuille (1) et d'une diffusion moléculaire de Knudsen (2), de remonter à des propriétés macroscopiques telles que la perméabilité apparente.

$$Q_{Poiseuille} = \frac{\pi d^4}{256\mu} \frac{P_1^2 - P_2^2}{L_c P_2} \quad (1)$$

$$Q_{Knudsen} = \frac{\pi d^3}{12L_c} \sqrt{\frac{8RT}{\pi M}} \frac{P_1 - P_2}{P_2} \quad (2)$$

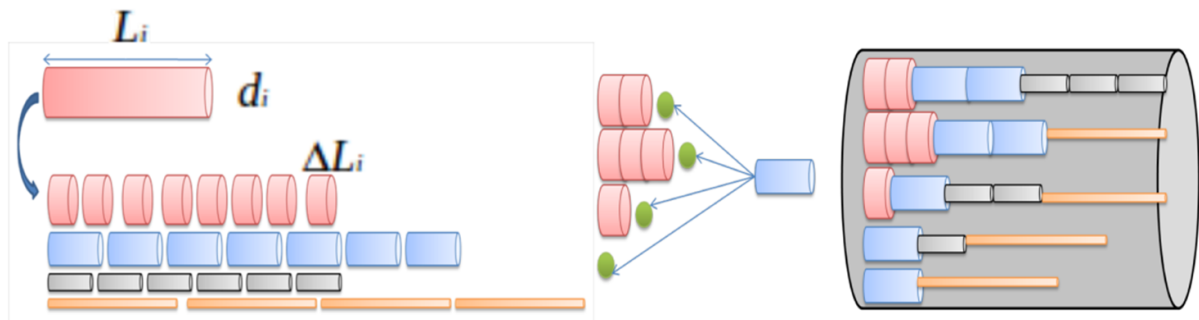


FIGURE 1 – Discretisation et réarrangement des pores

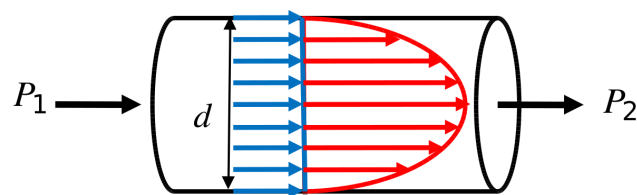


FIGURE 2 – Profil de vitesse

où  $d$  est le diamètre de pore,  $\mu$  la viscosité du fluide,  $L_c$  la longueur de pore caractéristique,  $T$  la température,  $M$  la masse molaire,  $P_{1,2}$  les pressions d'entrée et de sortie, respectivement, et  $R$  la constante des gaz parfaits. Le phénomène de diffusion se combine au flux visqueux (figure 2), augmentant ainsi le flux global lorsque la mesure de perméabilité est effectuée avec du gaz. La perméabilité mesurée dépend donc des propriétés et de la pression du gaz et est appelée perméabilité apparente, or la perméabilité intrinsèque du matériau, celle qui nous intéresse, ne dépend que de sa géométrie. Cette dépendance en pression a conduit Klinkenberg (KLINKENBERG 1941) à concevoir une approche permettant de déterminer la perméabilité intrinsèque à partir de plusieurs mesures à des pressions d'entrée différentes : lorsque celle-ci augmente, la participation de Knudsen au débit global — et donc à la perméabilité apparente — diminue. Tracer la perméabilité en fonction de l'inverse de la pression moyenne donne une droite dont l'ordonnée à l'origine est la perméabilité intrinsèque et la pente le coefficient de Klinkenberg, qui est caractéristique du matériau.

Parallèlement, le flux est décrit à l'échelle macroscopique avec une équation de Darcy. Écrire l'égalité entre ce flux macroscopique et la somme des flux microscopiques nous donne ainsi une expression analytique de la perméabilité apparente (3) :

$$K_a = \frac{\mu L_c}{S} \sum_{i=1}^{N_s} \frac{1}{\sum_{j=1}^{m(i)} \frac{\pi d_j^4}{L_j} \left[ \frac{1}{128\mu} + \frac{1}{12d_j} \sqrt{\frac{8RT}{\pi M}} \left( \frac{1}{P_{mj}} \right) \right]} \quad (3)$$

où  $K_a$  est la perméabilité apparente,  $S$  la surface de l'échantillon,  $N_s$  le nombre total de fibres,  $L_j$  la longueur du segment  $j$  de la fibre  $i$  et  $P_{mj}$  la pression moyenne dans le segment  $j$  du pore  $i$ . Cette expression est de la forme de l'équation de Klinkenberg :  $K_a = K_{in} \left( 1 + \frac{\beta}{P_m} \right)$ . Ce modèle a été validé sur des données expérimentales obtenues sur mortier à différents stades d'endommagement sous chargements uniaxiaux dans le régime pré-pic (KHADDOUR, GRÉGOIRE et PIJAUDIER-CABOT 2014).

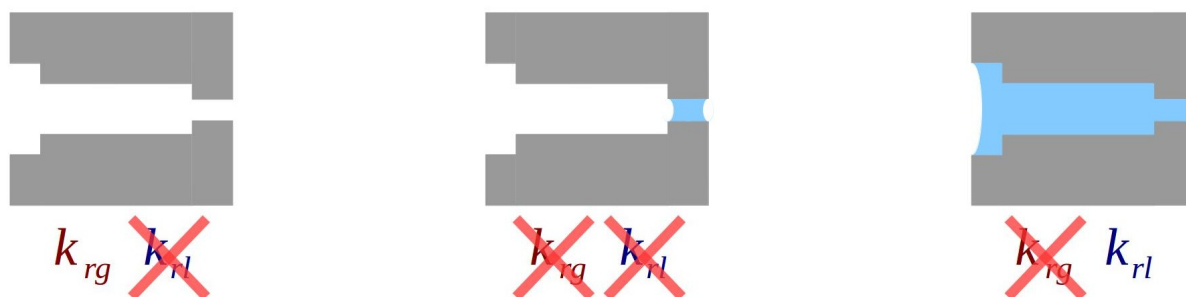


FIGURE 3 – États des pores

## 2.2 Saturation partielle

Une saturation partielle implique un flux multiphasique avec présence simultanée de gaz et de liquide dans le réseau poreux. L'extension du modèle introduit ci-avant se fait par l'intermédiaire de plusieurs corollaires :

- Nous partons d'un milieu vide et la condensation se produit selon la loi de Kelvin (4). Les pores saturent donc séquentiellement du plus petit au plus grand.
- Les perméabilités relatives au liquide et au gaz sont les rapports des perméabilités au liquide et au gaz à la perméabilité intrinsèque (5).
- Chaque fibre peut être dans l'un des trois états suivants : totalement saturée de liquide, totalement saturée de gaz ou partiellement saturée avec ces deux phases.

$$p_{sat.} = p_0 \cdot e^{\frac{-2\gamma v_m}{rRT}} \quad (4)$$

où  $p_0$  est la pression de vapeur saturante,  $\gamma$  la tension de surface,  $v_m$  le volume molaire et  $r$  le rayon de pore.

$$K_g = k_{rg} \cdot K_{in} \quad K_l = k_{rl} \cdot K_{in} \quad (5)$$

où  $K_g$  et  $K_l$  sont les perméabilités au gaz et au liquide,  $K_{in}$  la perméabilité intrinsèque et  $k_{rg}$  et  $k_{rl}$  les perméabilités relatives au gaz et au liquide.

$$k_{rg} = (1 - S_r)^q \left(1 - S_r^{1/m}\right)^{2m} \quad k_{rl} = S_r^q \left(1 - \left(1 - S_r^{1/m}\right)^m\right)^2 \quad (6)$$

où  $S_r$  est le niveau de saturation de l'échantillon,  $q$  et  $m$  sont les paramètres de Van Genuchten.

Pour calculer les perméabilités relatives du modèle, nous supposons que si un pore est totalement saturé de gaz il participe à la perméabilité au gaz, que s'il est totalement saturé de liquide il participe à la perméabilité au liquide et que s'il est partiellement saturé il ne participe à aucune des deux (figure 3). Avec cette approche simple nous ne tenons pas compte des mécanismes de pression de perçage.

Les règles ci-avant ne permettent pas de prédire de manière convenable la perméabilité relative au gaz, qui est surestimée. Les pores les plus petits — qui représentent une part non négligeable de la porosité totale et de la perméabilité intrinsèque — n'ont pas un impact suffisant sur la

perméabilité au gaz lorsqu'ils seaturent de liquide. L'effet combiné de leur volume important et de leur faible diamètre nous mène à penser que leur distribution spatiale doit avoir une forte probabilité de connecter de gros pores. L'assemblage parallèle monodiamétral dans lequel ils étaient placés dans le modèle hiérarchique ne permet pas de reproduire ce comportement.

La perméabilité d'un pore dépend pour beaucoup de la longueur et du diamètre du segment final. Dans le but de reproduire l'effet des petits pores sur la chute de perméabilité relative au gaz, des segments de pore de petit diamètre doivent être placés à la fin d'assemblages existants. Nous avons donc corrigé le système de réarrangement des pores de la manière suivante :

- Pour chaque pore  $i$ , une classe de pore  $j$  est choisie au hasard.
- Si le diamètre de  $j$  est plus grand que celui du dernier segment de  $i$ , nous en restons là pour nous tenir à la philosophie sous-tendant le modèle. Sinon, nous adjoignons au pore  $i$  un segment de  $j$ .
- Utilisant l'équation (7), qui exprime la perméabilité d'un assemblage de pores en série, nous calculons la longueur de pore qu'il est possible de placer en n'amputant que de manière négligeable la perméabilité de l'assemblage (e.g. 1%). Ainsi la perméabilité globale demeure-t-elle quasiment identique tandis que la prédiction du comportement du matériau partiellement saturé se trouve substantiellement améliorée.

$$K = \frac{\Phi (\sum_{i=1}^n L_i)^2}{8 \sum_{i=1}^n r_i^2 L_i \sum_{i=1}^n \frac{L_i}{r_i^4}} \quad (7)$$

où  $\Phi$  est la porosité du matériau.

Le point critique ici est la distribution des pores  $j$ . Nous supposons que la probabilité de connecter ce segment à la fin d'un assemblage existant suit une courbe de volume cumulé obtenue par intrusion de mercure puis normalisée.

### 3 Résultats

La loi phénoménologique de référence dans ce domaine est celle de Van Genuchten, qui donne les perméabilités relatives au gaz et au liquide en fonction de la saturation (6), et qui est une fonction d'un couple de paramètres qui sont généralement ajustés sur des données expérimentales. Nous avons utilisé une telle loi paramétrée sur un échantillon de béton du projet MACENA (KALLEL 2016) pour vérifier la capacité prédictive du modèle (figure 4). Nous allons donc maintenant nous attarder sur l'effet de l'endommagement sur les perméabilités relatives.

Les diverses PSD mesurées sur des échantillons soumis à des chargements uniaxiaux sont fournies par Khaddour et al. (KHADDOUR, GRÉGOIRE et PIJAUDIER-CABOT 2014). Elles sont classées par le niveau d'endommagement de l'échantillon défini comme le rapport du module d'Young de la courbe de déchargement sur l'initial. Les figures 5a et 5b montrent l'évolution de la perméabilité relative à la vapeur et à l'eau, respectivement. Il est à noter que les perméabilités relatives ne sont pas influencées par l'augmentation de perméabilité intrinsèque due à l'endommagement, qui s'est vue croître de deux ordres de grandeur.

La perméabilité relative à la vapeur n'est pas beaucoup influencée par l'endommagement, ce qui vient principalement du fait que la PSD des petits pores ne varie pas beaucoup avec l'endommagement en statique, conformément à la mécanique de la rupture qui prédit la croissance des plus gros défauts. La variation de perméabilité au gaz n'est donc due qu'à la

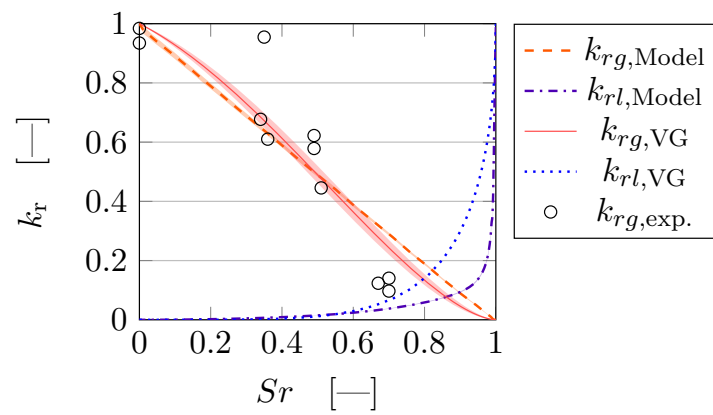


FIGURE 4 – Modèle VG ajusté MACENA vs. données expérimentales de (KALLEL 2016)

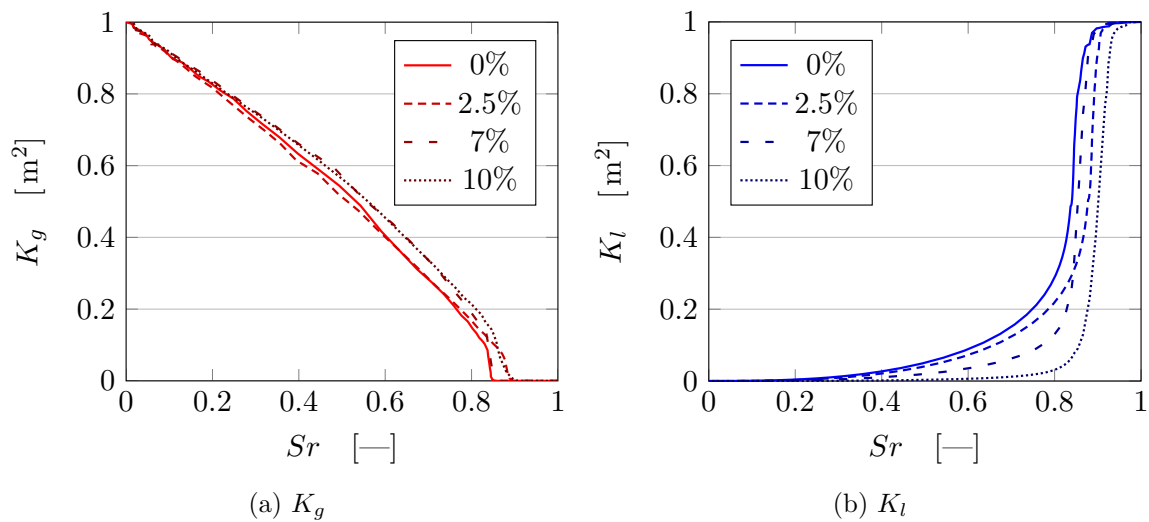


FIGURE 5 – évolution de perméabilité avec l'endommagement

variation de perméabilité intrinsèque. La perméabilité relative au liquide exhibe quant à elle un effet important de l'endommagement. Celui-ci affecte la PSD des pores les plus grands ( $> 10 \mu\text{m}$  de diamètre), ce qui explique que la diminution de perméabilité relative au liquide car la vapeur condense à des taux de saturation plus importants dans ces pores de diamètre plus élevé.

## 4 Conclusion et perspectives

Notre modèle de base est capable de suivre l'évolution de la perméabilité avec l'endommagement dans un matériau poreux totalement saturé. Nous avons discuté de son extension pour pouvoir prédire les perméabilités relatives dans un milieu partiellement saturé. Celle-ci était nécessaire car le modèle original surestimait sévèrement la perméabilité relative au gaz, ne parvenant pas à capturer l'effet de blocage du flux lors de la saturation en liquide des plus petits pores. Nous avons conçu un arrangement complémentaire du réseau initial sans changer sa perméabilité intrinsèque nous donnant accès aux perméabilités relatives au gaz et au liquide. Le modèle hiérarchique ainsi modifié nous permet d'estimer l'évolution de la perméabilité relative au gaz et au liquide en fonction de l'endommagement. Ces estimations nécessitent des comparaisons expérimentales supplémentaires.

Il nous faut maintenant évaluer l'impact du gradient de pression sur le comportement des ménisques, et où les pressions de perçage se situent par rapport à notre cas d'étude (5 bar). Nous saurons ainsi si la perméabilité relative est principalement pilotée par le mécanisme de condensation ou de perçage capillaire, ce qui validera ou non notre approche initiale, qui était que les ménisques, une fois formés, ne se déplacent plus. Enfin, nous implémenterons ce modèle dans un code éléments Finis tel que Cast3M pour simuler le cas test de MACENA sur un élément structurel représentatif.

## Remerciements

Cette étude à été effectuée grâce au soutien financier de l'ANR par le projet PIA MACENA.

## Références

- CARMAN, Phillip C (1937). "Fluid flow through granular beds". In : *Transactions-Institution of Chemical Engineers* 15, p. 150–166.
- GARCIA-BENGOCHEA, Ignacio, Adolph G ALTSCHAEFFL et Charles William LOVELL (1979). "Pore distribution and permeability of silty clays". In : *Journal of the Geotechnical Engineering Division* 105.7, p. 839–856.
- KALLEL, Hatem (2016). "Influence de la température et de l'hygrométrie sur le comportement instantané du béton". Thèse de doct. Pau.
- KHADDOUR, Fadi, David GRÉGOIRE et Gilles PIJAUDIER-CABOT (2014). "Computing permeation properties of mortar from pore size distributions". In : *Computational modelling of concrete structures*. T. 1. CRC press, p. 405–414.
- KLINKENBERG, LJ et al. (1941). "The permeability of porous media to liquids and gases". In : *Drilling and production practice*. American Petroleum Institute.
- KOZENY, Josef (1927). *Über kapillare Leitung des Wassers im Boden :(Aufstieg, Versickerung und Anwendung auf die Bewässerung)*. Hölder-Pichler-Tempsky.