Science Arts & Métiers (SAM)

is an open access repository that collects the work of Arts et Métiers Institute of Technology researchers and makes it freely available over the web where possible.

This is an author-deposited version published in: https://sam.ensam.eu
Handle ID: .http://hdl.handle.net/10985/10032

To cite this version :

Guillaume MALVAULT, Aimad OUKHLEF, Azita AHMADI-SENICHAULT, Abdelhak AMBARI, Antonio RODRIGUEZ DE CASTRO, Stephane CHAMPMARTIN - Nouvelle méthode de détermination de la distribution de la tailles des pores d'un milieu poreux par l'injection d'un fluide à seuil - In: 11ème Congrès de Mécanique, Maroc, 2013-04-23 - 11ème Congrès de Mécanique - 2013

Any correspondence concerning this service should be sent to the repository Administrator : scienceouverte@ensam.eu

Arts et Métiers Institute of Technology

Nouvelle méthode de détermination de la distribution de la tailles des pores d'un milieu poreux par l'injection d'un fluide à seuil

G. Malvault, A. Oukhlef, A. Rodriguez Del Castro, S. Champmartin, A. Ahmadi-Sénichault, A. Ambari.

LAMPA, Arts et Métiers ParisTech, 2 bd de Ronceray, 49035 ANGERS
TREFLE (UMR 8508), Esplanade des Arts et Métiers, 33405 TALENCE Cedex

Introduction

La caractérisation des milieux poreux (M.P.) en termes de porosité, de surface spécifique, de distribution de tailles de pores etc. est un enjeu important pour de nombreuses filières industrielles : récupération assistée de pétrole, thermique du bâtiment, séquestration de CO_2, stockage d'énergie… Ainsi, les phénomènes de transports liés aux écoulements au sein des M.P. ont occupé et continuent à stimuler une forte activité de recherche aussi bien fondamentale qu'appliquée. La plupart du temps, ces recherches portent sur la création de nouvelles méthodes de caractérisation géométrique des pores et de leur structure.

Les méthodes expérimentales actuelles de caractérisation en termes de tailles de pores sont onéreuses lentes et compliquées (porosimètre au mercure [1], sorption isotherme [2], diffraction de rayons [3] …), et parfois toxiques (porosimétrie à mercure).

Dans cette communication, nous présentons une méthode innovante qui s'appuie sur l'écoulement d'un fluide viscoplastique à seuil au travers d'un poreux permettant de scanner la distribution de taille de pores. L'analyse théorique de cette technique a été validée numériquement dans le cadre de la thèse d'A. Oukhlef [4]. Par ce travail nous montrons comment nous avons validé expérimentalement cette nouvelle méthode. En effet, celle-ci est relativement rapide : elle peut être menée en quinze minutes. Non-destructive, elle nécessite un appareillage simple et ne génère pas de déchet toxique comme la porosimétrie au mercure.

Après un rappel des fondements théoriques et des modèles employés, nous présentons des résultats expérimentaux qui démontrent l'applicabilité de la méthode sur des distributions mono- et multimodales, ses capacités et ses limites.

Formulation et analyse théorique.

A l'instar des autres méthodes utilisées, le modèle de faisceau de capillaires de type Carman-Kozeny a été adopté dans une première approche pour modéliser les M.P. Nous supposons que les pores sont de section circulaire et leurs rayons sont distribués selon une densité de probabilité p(r) (cf. fig.1). À remarquer que si ces sections ne sont pas circulaires, il est possible d'introduire leur rayon hydraulique. Quant à la tortuosité celle-ci ne pose aucun problème car elle peut être intégrée dans les calculs par un allongement fictif de l'épaisseur du milieu poreux et non dans la distribution de ses rayons [5, 9]. L'idée physique de base est que pour mettre les fluides à seuil en écoulement dans un pore, il est nécessaire d'imposer entre ses deux extrémités un gradient de pression supérieur à une valeur critique dépendant de son rayon r et de la contrainte seuil τ_0 du fluide à seuil utilisé. Globalement dans l'échantillon poreux, plus le gradient de pression augmente plus le fluide s'écoule au travers de pores de rayons de plus en plus petits. Ceci permet de scanner la courbe de la distribution de tailles des pores.

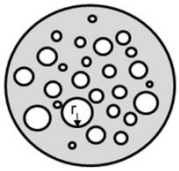

Figure. 1 : Modèle de faisceau de capillaires distribués.

Le principe consiste donc à acquérir la courbe d'évolution du débit total dans le M.P. en fonction du gradient de pression imposé au milieu poreux et d'en extraire à partir de la formule d'inversion rappelée plus bas, la distribution de tailles des pores (DTP). Les fluides utilisés sont des fluides à seuil de type Bingham. Comme il est difficile de trouver un fluide réel de ce type, nous avons généralisé le modèle au fluide de type Herschel-Bulkley. Dans ce modèle, au-delà de la contrainte seuil τ_0, le comportement est prolongé par un comportement en loi de puissance. Il s'agit donc d'un modèle à trois paramètres : la contrainte seuil τ_0, la consistance du fluide k et l'indice de fluidité n. La loi de comportement rhéologique décrivant ce modèle est donnée par :

$$\begin{cases} \underline{\underline{\tau}} = 2\left(k\ \sqrt{2\underline{\underline{D}}:\underline{\underline{D}}}^{\,n-1} + \dfrac{\tau_0}{\sqrt{2\underline{\underline{D}}:\underline{\underline{D}}}} \right)\underline{\underline{D}} & \text{pour } \sqrt{\dfrac{\underline{\underline{\tau}}:\underline{\underline{\tau}}}{2}} > \tau_0 \\ \underline{\underline{D}} = 0 & \text{pour } \sqrt{\dfrac{\underline{\underline{\tau}}:\underline{\underline{\tau}}}{2}} \le \tau_0 \end{cases} \quad (1)$$

où $\underline{\underline{\tau}}$ est le tenseur des contraintes et $\underline{\underline{D}}$ le tenseur taux de déformation.

L'expression analytique du débit élémentaire de l'écoulement d'un fluide à seuil de type Herschel-Bulkley, dans un capillaire de section circulaire est donnée par [7] pour $r > r_0$:

$$q_v(\nabla P, r, n) = n\pi r^3 \left(\frac{\nabla P r}{2k}\right)^{\frac{1}{n}} \left(1-\frac{r_0}{r}\right)^{\frac{n+1}{n}} \cdot \left[\frac{\left(1-\frac{r_0}{r}\right)^2}{3n+1} + \frac{\frac{2r_0}{r}\left(1-\frac{r_0}{r}\right)}{2n+1} + \frac{\left(\frac{r_0}{r}\right)^2}{n+1}\right] \quad (2)$$

Celle-ci constitue le noyau de l'équation intégrale linéaire de type Volterra de première espèce qui donne le débit total traversant le milieu poreux :

$$Q_V(\nabla P) = \int_{r_0}^{\infty} q_v(\nabla P, r, n).p(r)dr \quad (3)$$

p(r) est la fonction inconnue et — 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 ». Dans ces conditions, il est possible d'obtenir une relation générale entre la densité de probabilité p(r) et les dérivées partielles successives du débit $\partial^i Q_v / \partial \nabla P^i$ qui peuvent être fractionnaires ([4,8]. Dans le cas où est réel, il est toujours possible de l'encadrer par deux rationnels car Q est un ensemble dense):

$$p(r) = \frac{2^{\frac{3n-1}{n}} k^{\frac{1}{n}} (\nabla P)^2}{16.\Gamma\left(\frac{1}{n}+1\right)\pi\tau_0 r^{\frac{3n+1}{n}}} \cdot \left[\frac{4n+1}{n}.\frac{\partial^{\frac{n+1}{n}} Q_V(\nabla P)}{\partial \nabla P^{\frac{n+1}{n}}} + \nabla P.\frac{\partial^{\frac{2n+1}{n}} Q_V(\nabla P)}{\partial \nabla P^{\frac{2n+1}{n}}}\right]\Bigg|_{\nabla P = \frac{2\tau_0}{r}} \quad (4)$$

Pour vérifier la validité de cette formule, nous supposons connaître la DTP dans une première étape. Comme la plupart des distributions dans les milieux poreux naturels

sont gaussiennes, nous choisissons ce type de distribution de moyenne m et d'écart type σ. Dans ces conditions, le débit total par rapport au gradient de pression résultant de l'écoulement du fluide de Herschel-Bulkley est donné par la courbe caractéristique , représentée fig. 2. Dans une seconde étape, la distribution initialement introduite est oubliée. La courbe débit-gradient de pression donnée par le calcul initial (à la place de celle donnée par une expérience) est alors utilisée comme point de départ. L'équation 4 est appliquée à cette courbe caractéristique et permet effectivement de retrouver la DTP initiale (cf. fig. 3). Ces résultats sont applicables à n'importe quelle distribution [1].

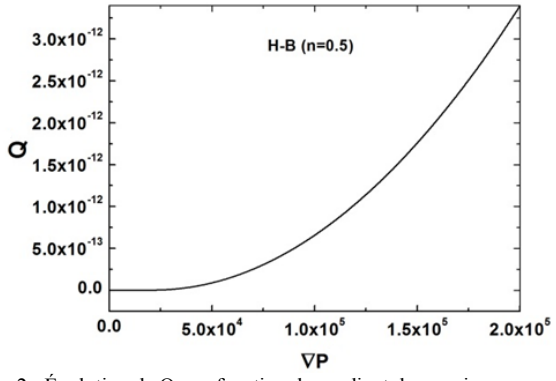

Figure 2 : Évolution de Q_V en fonction du gradient de pression pour une distribution gaussienne (m=1µm, σ=0,2µm) en utilisant un fluide de Herschel-Bulkley (τ_0=20Pa ; k=10Pa.s^n ; n=0,5).

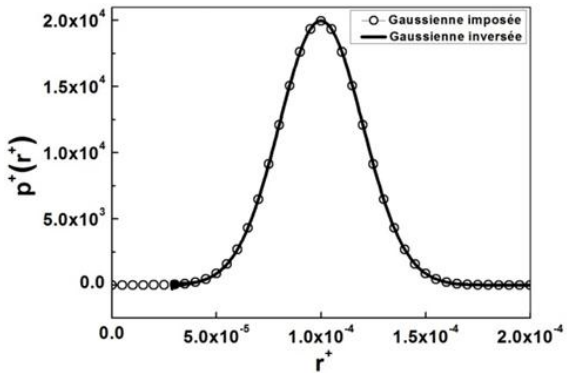

Figure 3 : Comparaison entre la DTP initiale et celle calculée pour la distribution gaussienne et le fluide de Herschel-Bulkley présentés fig. 2. Les rayons et la distribution ont été normalisés par la longueur du milieu poreux L=10^{-2}m.

Dispositif expérimental et techniques de mesure

Afin de reproduire le modèle de Carman-Kozeny, nous avons synthétisé des M.P. à l'aide de capillaires de verre de diamètres calibrés ou de plaques épaisses forées de part en part. Les pores ainsi réalisés sont mesurées optiquement et leurs distributions continues associées sont estimées par noyaux gaussiens (KDE) [9]. Afin d'éviter l'usage d'un rhéomètre sophistiqué, un capillaire seul de diamètre 1025 ± 2 µm permet d'obtenir par une mesure directe l'expression du kernel en fonction du gradient de pression.

L'interpolation des points expérimentaux par l'expression (2) permet d'obtenir à la fois les paramètres rhéologiques (τ_0, k, n). La validité du montage expérimental est vérifiée par la comparaison de ces paramètres à ceux obtenus par un rhéomètre (Kinexus Malvern) comme on peut le voir sur la figure 4.

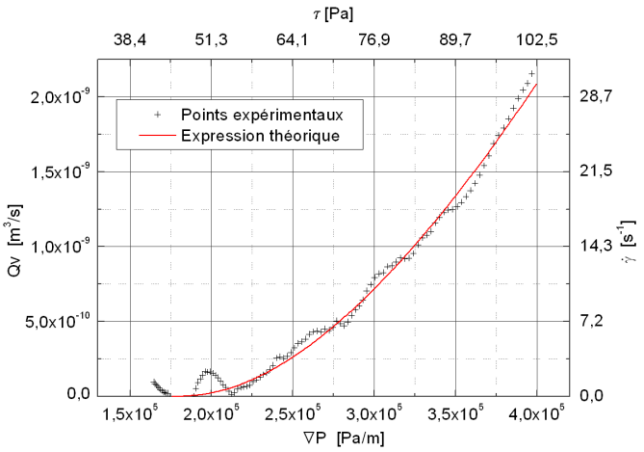

Figure 4 : courbe expérimentale d'injection dans un capillaire unique et niveaux de contrainte et de taux de cisaillement maximaux vus par le fluide.

À partir des distributions de taille de pores d'un silicate fritté A10 [10] et d'un grès de Fontainebleau [11], nous avons conçu deux distributions de capillaires correspondants à chacun des cas. Les valeurs des rayons ont été multipliées par 25 pour s'adapter à la rhéologie du fluide viscoplastique utilisé. Les distributions estimées sont représentées sur les fig. 6 et 7 avec leurs paramètres de lissage σ_{KDE} entre parenthèses. Le fluide à seuil employé est une émulsion huile-eau dont la distribution de taille des micelles est comprise entre 7 µm et 40 µm. Elle est préalablement dégazée dans une cloche à vide pour lui retirer les microbulles qui lui confèrent éventuellement une élasticité. Les paramètres rhéologiques ont été mesurés aussi avec un rhéomètre Kinexus (Malvern). La géométrie utilisée est un cône de diamètre 60mm et d'un degré d'angle au sommet, mobile au-dessus d'un plan fixe. Une rampe logarithmique de contrainte de 10^{-2} Pa à 250 Pa en 5 minutes est imposée. Les paramètres rhéologiques sont déterminés par régression non linéaire d'une loi de type Herschell-Bulkley sur la gamme de contraintes atteintes par le fluide dans le milieu poreux. Nous trouvons typiquement :

τ_0 = 45±2 Pa k = 5±0,5 Pa.s^n n = 0,7±0,005

Ces niveaux de contrainte (τ) et de taux de cisaillement ( ) vus par le fluide à la paroi sont également représentés dans la figure 4.

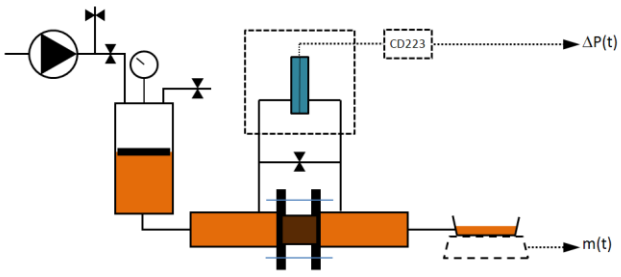

Figure 5 : Schéma du montage expérimental employé

Le montage expérimental (cf. fig. 5) permettant l'injection et l'acquisition du débit et du gradient de pression est composé d'un compresseur et d'un jeu de vannes qui permettent d'imposer à l'amont du milieu poreux une pression statique dans un réservoir cylindrique vertical. Cette pression est appliquée au fluide viscoplastique par l'intermédiaire d'un piston libre afin d'éviter la digitation. Le milieu poreux est placé entre deux chambres assurant

l'établissement de l'écoulement. Il est entièrement saturé au début de l'expérience. Un capteur de pression différentielle inductif à membrane (pleine échelle 88cm CE) est utilisé pour mesurer le gradient de pression avec une précision de ±3% au niveau de 3 écarts-types. Une balance précise au milligramme, interfacée à un PC par une liaison de type RS232, fournit le débit qui, après filtrage, est entaché d'une erreur de 2.10^{-4}g/s au niveau de 3 écarts-types.

L'inversion du problème a été réalisée soit par l'application de la formule (4) ou numériquement par la méthode suivante : en effet, l'équation intégrale du problème direct peut s'exprimer par une somme discrète :

(5)

La résolution de ce système se réduit à l'inversion de la matrice . Pour plus de stabilité numérique, les valeurs de sont prises telles que — — .

Résultats et discussions

La comparaison des mesures expérimentales pour des DTP uni- et bimodale avec les mesures optiques (obtenues par profilométrie) effectuées sur ces échantillons est donnée dans les figures 5 et 6. Pour la DTP uni-modale, la concordance entre les deux approches est excellente. La méthode permet de retrouver la distribution de tailles de pores ainsi que ses différentes caractéristiques comme l'asymétrie de la distribution et l'ordre de grandeur des amplitudes.

Conclusion

Nous avons montré qu'une expérience d'injection d'un fluide à seuil dans un milieu poreux quelconque permet de scanner la distribution de tailles de pores de ce milieu. Un montage expérimental simple utilisant une émulsion permet de retrouver cette distribution dans le cadre du modèle de Carman-Kozeny. Les distributions retrouvées sont fiables pourvu qu'un soin particulier soit apporté à la mesure des paramètres rhéologiques. La taille des micelles de notre émulsion, ou plus généralement de l'échelle élémentaire des éléments qui constituent tout fluide à seuil, conditionne la taille du plus petit pore qu'il est possible d'envahir et par conséquent de mesurer. L'emploi de nano-émulsions permettra d'atteindre des tailles beaucoup plus petites.
Devant ce succès, nous pouvons affirmer que dorénavant, cette technique pourra être utilisée à l'échelle industrielle dès que des comparaisons avec les techniques classiques existantes seront effectuées.

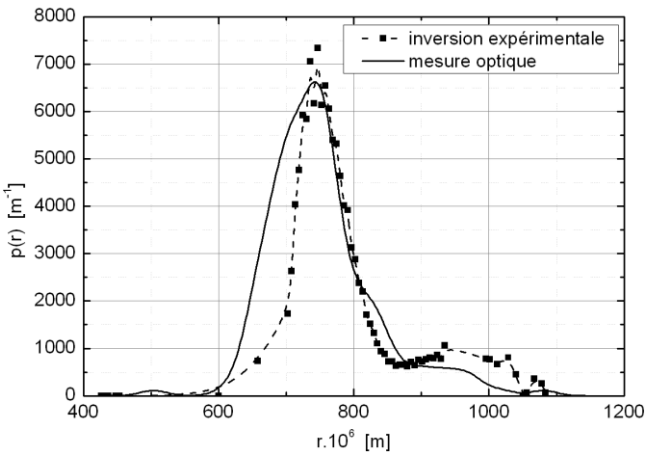

Figure 6 : Comparaison des distributions optiques (σ_{KDE}=20.10^{-6}) et expérimentales de la réplique du grès de Fontainebleau.

Pour la distribution bimodale, l'allure globale est également restituée. Le décalage dans les amplitudes est lié à l'erreur introduite lors du passage du modèle discret au modèle continu.

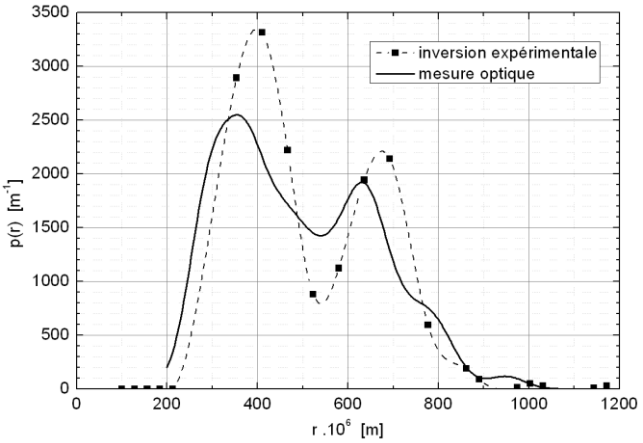

Figure 7 : Comparaison des distributions optiques (σ_{KDE}=40.10^{-6}) et expérimentales de la réplique du silicate fritté A10.

Références

[1] H. Giesche, *Mercury Porosimerty : A General (Practical) Overview*. Part. Part. Syst. Charact. 23 (2006) 9-19.

[2] C.R. Reid, I.P.O'Koye et K.M.Thomas. *Adsorption of Gases on Carbon Molecular Sieves Used for Air Separation. Spherical Adsorptives as Probes for Kinetic Selectivity*. Langmuir 14 (1998) 2415-2425.

[3] G. Zaccai et B. Jacrot. *Small Angle Neutron Scattering.* Annual Review of Biophysics and Bioengineering 12 (1983) 139-157.

[4] A. Oukhlef, *Détermination de la distribution de tailles de pores d'un milieu poreux*, Thèse de doctorat de l'école Arts et Métiers ParisTech d'Angers, 2011, pp. 35.

[5] A. E. Scheidegger, *The physics of flow through porous media*, 3e éd., University of Toronto Press, 1974.

[6] F. A. L. Dullien, *Porous Media- Fluid Transport and Pore Structure*, 2e éd., Academic Press, 1992.

[7] R. B. Bird, R. C. Armstrong et O. Hassager, *Dynamics of polymeric liquids*, 2e éd., vol. I, New York: John Wiley & Sons, 1987.

[8] A. Oukhlef, A. Ambari, S. Champmartin, et A. Despeyroux, *Détermination de la distribution de tailles de pores d'un milieu poreux par la méthode des fluides à seuil*, 20ème Congrès Français de Mécanique, Besançon, France, 2011.

[9] D. W. Scott, *Multivariate Density Estimation. Theory, Practice, and Vizualization*, John Wiley & Sons, 1992.

[10] G.S. Armatas et P.J. Pomonis, *A Monte Carlo pore network for the simulation of porous characteristics of functionalized silica: pore size distribution, connectivity distribution and mean tortuosities*,Chem. Eng. Sci., 2004.

[11] W.B. Lindquist et A. Ventakaranga, *Investigating 3D geometry of Porous Media from High Resolution Images*, Phys. Chem. Earth (A), 1998.