



### **Science Arts & Métiers (SAM)**

is an open access repository that collects the work of Arts et Métiers ParisTech 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/10985/10239](http://hdl.handle.net/10985/10239)

#### **To cite this version :**

Aimad OUKHLEF, Guillaume MALVAULT, Stéphane CHAMPMARTIN, Abdelhak AMBARI - Identification de la distribution de tailles de pores d'un milieu poreux par analyse fréquentielle - In: 11ème congrès de Mécanique du Maroc, France, 2013-04 - Congrès de Mécanique du Maroc - 2013

Any correspondence concerning this service should be sent to the repository

Administrator : [archiveouverte@ensam.eu](mailto:archiveouverte@ensam.eu)



# IDENTIFICATION DE LA DISTRIBUTION DE TAILLES DE PORES D'UN MILIEU POREUX PAR ANALYSE FRÉQUENTIELLE

A. OUKHLEF, G. MALVAULT, S. CHAMPMARTIN, A. AMBARI

LAMPA, Arts et Métiers ParisTech, 2 bd du Ronceray, 49035 Angers

## Introduction

Cette communication présente une nouvelle approche pour aider à la caractérisation de la topologie des milieux poreux en termes de distribution de tailles de pores (DTP). Cette technique repose sur l'analyse dynamique de l'écoulement oscillant d'un fluide newtonien (ou non newtonien) à travers le milieu poreux. Elle consiste en l'utilisation de la fonction de transfert hydrodynamique du milieu poreux et plus particulièrement en la caractérisation de son admittance complexe. Le principe de cette technique est basé sur le fait que l'épaisseur de pénétration hydrodynamique, fonction de la fréquence d'oscillation du gradient de pression imposé, permet de scanner les différentes tailles de pores. Le modèle de faisceau de capillaires parallèles (de type Carman-Kozeny) a été utilisé. Cette technique a été validée en utilisant plusieurs types de distributions, dans le cas où le fluide utilisé est newtonien (et pour des fluides en loi de puissance dans le cas non-newtonien). Par rapport aux techniques existantes, cette nouvelle méthode se distingue par sa simplicité, sa non-toxicité et son faible coût. Les différentes méthodes expérimentales pour déterminer la DTP d'un milieu poreux sont décrites dans les ouvrages classiques comme [1-3]. On peut par exemple citer la porosimétrie par intrusion du mercure, basée sur l'existence d'une pression d'invasion minimale inversement proportionnelle au rayon de pores. Une autre méthode classique est l'adsorption isotherme [4] basée sur les interactions moléculaires de type « Van-Der-Waals » entre la vapeur du gaz et la surface interne des pores. On distingue également la thermoporométrie [5], qui utilise deux approches différentes : soit la calorimétrie soit la RMN. Citons finalement la diffusion aux petits angles des rayons X ou des neutrons [6,7], l'analyse stéréologique [8], la microscopie (optique classique, à force atomique, électronique à balayage et électronique à transmission). Ces techniques de mesure de la distribution de tailles de pores présentent un certain nombre d'inconvénients comme la toxicité (utilisation du mercure), la destruction de l'échantillon (stéréologie ou les hautes pressions mises en œuvre), la complexité de l'interprétation des résultats (diffusion aux petits angles et thermoporométrie), la complexité et le prix des appareils (microscopie), la durée des campagnes de mesure (adsorption isotherme et thermoporométrie)... Dans ce travail, nous proposons une nouvelle méthode pouvant être utilisée pour la détermination de la DTP [9]. Cette technique est basée sur la réponse en débit d'un fluide newtonien à une perturbation sinusoïdale du gradient de pression au sein du milieu poreux. La fonction de transfert du système ou plus simplement son admittance, définie comme le rapport de la réponse en débit au gradient de pression sinusoïdale

imposé :  $\bar{G}(\omega) = \bar{Q}(\omega) / \nabla P_0$ , est mesurée en fonction de la pulsation  $\omega$ . Comme cette admittance complexe dépend de la distribution de la taille de pores constituant le poreux, il est possible de résoudre le problème inverse que constitue la détermination de cette distribution en taille de pores. Cette inversion est possible car le problème du développement de la couche limite hydrodynamique au sein des pores est linéaire. Pour justifier physiquement l'utilisation de cette technique, il faut se rappeler que la profondeur de pénétration hydrodynamique dépend de la fréquence d'oscillation du gradient de pression imposé et que l'amplitude du débit total est modulée par les amplitudes élémentaires complexes dans chaque capillaire en fonction de la fréquence. Rappelons que cette fonction de transfert élémentaire est caractérisée par une fréquence de coupure qui dépend du rayon  $r$  du capillaire concerné ( $\omega^* \propto \nu / r^2$ ). Par conséquent, le module et la phase de l'amplitude complexe du milieu poreux sont fortement dépendants de la fréquence et de la distribution de tailles de pores. Cette approche originale qui permet de scanner les différentes tailles de pores est développée dans le paragraphe suivant.

## Présentation du modèle

Dans une première approximation, à l'instar de ce qui a été utilisé par plusieurs chercheurs, nous adopterons le modèle de faisceau de capillaires en parallèle de sections circulaires, pour décrire l'écoulement dans un milieu poreux réel constitué de pores dont les rayons sont distribués de manière polydisperse (voir fig.1). Dans ces conditions, une série de capillaires parallèles, dont les rayons  $r$  sont distribués suivant une loi de probabilité  $p(r)$ , est soumise à une sollicitation sinusoïdale en gradient de pression  $\nabla P(t) = \nabla P_0 \exp(i\omega t)$ . Le système étant linéaire dans le cas des fluides newtoniens en régime laminaire, la réponse en débit est parfaitement sinusoïdale. L'amplitude complexe du débit total  $\bar{Q}(\omega)$  à travers ce faisceau de capillaires soumis à ce gradient de pression oscillatoire de pulsation  $\omega$  s'écrit sous la forme intégrale suivante :

$$\bar{Q}(\omega) = \int_0^{\infty} \tilde{q}(\omega, r) p(r) dr \quad (1)$$

où  $\tilde{q}(\omega, r)$  est l'amplitude complexe du débit élémentaire dans un seul tube capillaire de rayon  $r$ . Celui-ci constitue le noyau de cette équation intégrale de Fredholm [10].

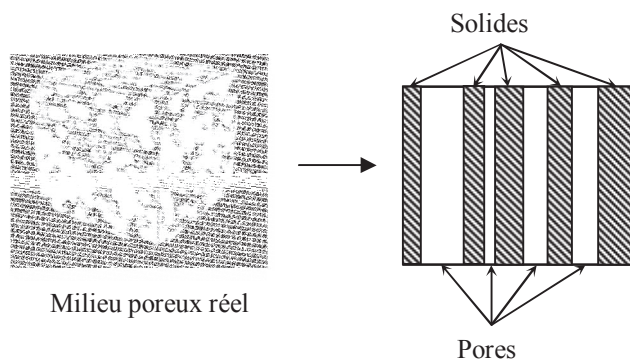


Figure 1 : Modèle de faisceau de capillaires.

### i) Calcul du noyau

Pour déterminer ce noyau, nous avons besoin de connaître la réponse en fréquence du débit d'un capillaire de section circulaire, de longueur  $L$  et de rayon  $r$ , à travers lequel s'écoule un fluide newtonien de masse volumique  $\rho$ , de viscosité dynamique  $\mu$  (et donc de viscosité cinématique  $\nu = \mu/\rho$ ), soumis à une sollicitation sinusoïdale en pression entre l'entrée et la sortie du capillaire (voir fig.2).

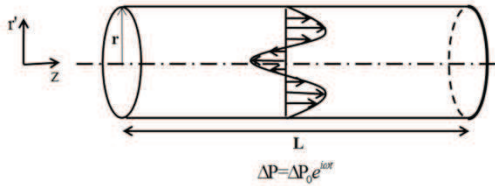


Figure 2 : Ecoulement oscillatoire à travers un capillaire

L'écoulement étant par droites parallèles l'équation de Navier Stokes se réduit à celle de l'amplitude de la vitesse :

$$\frac{\partial^2 \tilde{u}}{\partial r'^2} + \frac{1}{r'} \frac{\partial \tilde{u}}{\partial r'} + \frac{i^3 \omega}{\nu} \tilde{u} = \frac{-\nabla P_0}{\mu} \quad (2)$$

où  $u(r', \omega, t) = \tilde{u}(r', \omega) e^{i\omega t}$ ,  $\omega$  la pulsation et  $i = \sqrt{-1}$ .

En coordonnées cylindriques  $(r', \theta, z)$  la solution de cette équation différentielle de type Bessel a été obtenue par Womersley [11]. Finalement, l'amplitude complexe du débit volumique dans un capillaire est donnée par :

$$\tilde{q}(\alpha, r) = \frac{\pi r^4 \nabla P_0}{i \mu \alpha^2} \left[ 1 - \frac{2J_1(\alpha i^{3/2})}{\alpha i^{3/2} J_0(\alpha i^{3/2})} \right] \quad (3)$$

où  $\alpha = r/\delta$  est le nombre de Womersley, c'est-à-dire le rayon du tube normalisé par l'épaisseur de diffusion de quantité de mouvement  $\delta = \sqrt{\nu/\omega}$ . Dans ces conditions le tube capillaire de rayon  $r$  est caractérisé par l'admittance complexe :

$$\tilde{g}(\alpha, r) = \frac{\tilde{q}(\alpha, r)}{\nabla P_0} \quad (4)$$

La normalisation de l'admittance complexe par l'admittance aux très basses fréquences (TBF) :

$g_{TBF}(r) = \pi r^4 / 8\mu$  donne :

$$\tilde{g}_{Nor.}(\alpha) = \frac{\tilde{g}(\alpha, r)}{g_{TBF}(r)} = \frac{8}{i \alpha^2} \left[ 1 - \frac{2J_1(\alpha i^{3/2})}{\alpha i^{3/2} J_0(\alpha i^{3/2})} \right] \quad (5)$$

Le module  $\|\tilde{g}_{Nor.}(\alpha)\|$  et la phase  $\varphi(\alpha)$  de l'admittance complexe normalisée sont représentés en fonction du nombre de Womersley sur la fig. 3. On note que la pente du module de l'admittance normalisée est de  $(-2)$  et la fréquence de coupure  $\alpha^*$  est de l'ordre de 1 en coordonnées logarithmiques. Physiquement, cette coupure a lieu lorsque l'épaisseur de couche limite devient égale au rayon du tube.

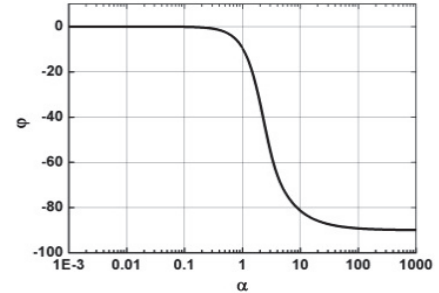
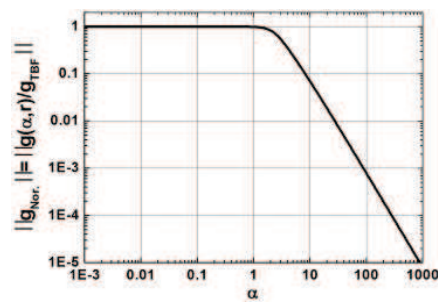


Figure 3 : Module et phase de l'admittance complexe en fonction du nombre de Womersley  $\alpha$

### ii) Calcul de l'admittance complexe du système

Le calcul direct permet d'obtenir la fonction de transfert hydrodynamique du milieu poreux, c'est-à-dire son admittance complexe définie comme le rapport de la réponse en débit au gradient de pression imposé  $\bar{G}(\omega) = \bar{Q}(\omega) / \nabla P_0$ . L'admittance complexe totale du système peut donc être calculée par :

$$\bar{G}(\omega) = \int_0^{\infty} \tilde{g}(\omega, r) p(r) dr \quad (6)$$

où  $\tilde{g}(\omega, r)$  est l'admittance complexe élémentaire qui représente le noyau de cette équation intégrale de Fredholm. Elle est donnée par l'équation (4) en remplaçant  $\alpha = r/\delta$  par  $\alpha = r\sqrt{\omega/\nu}$  pour l'analyse fréquentielle. Ici  $p(r)$  est la fonction à déterminer par inversion de l'équation (6).

### iii) Calcul inverse

La solution de l'équation de Fredholm (éq.6) est obtenue numériquement par une résolution basée sur une méthode matricielle. Rappelons que cette équation de Fredholm est inhomogène et de première espèce où  $\bar{G}(\omega)$  est le terme source et  $\tilde{g}(\omega, r)$  est le noyau de l'intégrale. On note  $\bar{G}_j = \bar{G}(\omega_j)$ ,  $\tilde{g}_{ij} = \tilde{g}(\omega_j, r_i)$  et  $p_i = p(r_i)$  avec j un indice variant de 1 à N (pulsations) et i un indice variant de 1 à N (rayons). L'équation de Fredholm se réécrit sous une forme matricielle comme :

$$\bar{G}_j = \sum_{i=1}^N \tilde{g}_{ij} p_i \Delta r_i \quad (7)$$

Ou bien :

$$\underline{\bar{G}} = \left( \underline{\tilde{g}} \cdot \underline{p} \right) \Delta r \quad (8)$$

Mathématiquement, si le noyau  $\underline{\underline{\tilde{g}}}$  n'est pas singulier, la solution existe, est unique et est donnée par la relation suivante :

$$\underline{p} = \frac{1}{\Delta r} (\underline{\underline{\tilde{g}}}^{-1} \cdot \underline{\underline{\tilde{G}}}) \quad (9)$$

$\underline{\underline{\tilde{g}}}^{-1}$  est la matrice inverse de  $\underline{\underline{\tilde{g}}}$ .

### Applications et résultats

En général, la densité de probabilité  $p(r)$  n'est pas connue. Cependant, pour vérifier notre méthode, nous sommes amenés à effectuer un calcul direct de l'admittance complexe totale en la supposant connue a priori. Cette distribution est choisie gaussienne, de moyenne  $m$  et d'écart-type  $\sigma$ . A titre d'exemple nous considérons  $m = 100 \mu\text{m}$  et  $\sigma = 20 \mu\text{m}$ . Pour obtenir l'admittance totale complexe du système, on utilise la relation (6). Par la suite on trace le module et la phase de l'admittance complexe du système en fonction de la pulsation  $\omega$ . Pour plus de clarté, nous procédons à une adimensionnalisation des équations en normalisant le rayon par la racine carrée du moment d'ordre 2 :  $r^+ = r / \sqrt{m_2}$  afin de respecter l'ordre de grandeur de la taille des pores (rappelons que  $m_2$  peut être connu grâce à la surface et la porosité de l'échantillon). La pulsation est aussi normalisée par l'inverse du temps de diffusion de la quantité de mouvement :  $\omega^+ = \omega / (v / m_2)$ . La figure 4 présente l'évolution du module et de la phase de l'admittance complexe totale adimensionnelle en fonction de la pulsation  $\omega^+$ .

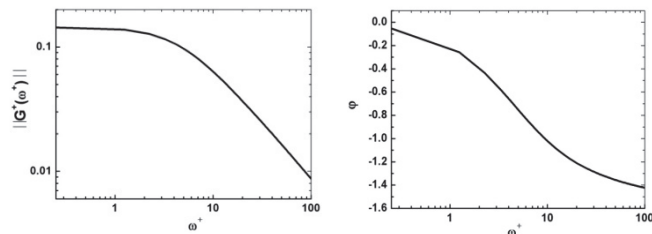


Figure 4 : Module et phase de l'admittance complexe adimensionnelle équivalente en fonction de la pulsation (100 points)

A ce stade nous « oublions » la distribution supposée et partant des valeurs tirées de la figure 4 (ici  $N=100$ ) du module et de la phase, on peut retrouver la distribution de tailles de pores initiale. En effet, pour inverser numériquement l'équation de Fredholm, nous avons besoin de discrétiser le noyau  $\underline{\underline{\tilde{g}}}$  en un même nombre de points dans l'espace des pulsations et des rayons pour la construction la matrice. Maintenant, il est possible après l'inversion de cette matrice complexe de calculer la densité de probabilité inconnue et de la comparer à celle supposée initialement. La figure 5 montre la parfaite concordance des résultats obtenus et confirme la validité de la méthode. D'autres types de distributions bi ou tri-modales ont également été testés et validés. Cette technique nécessite l'utilisation d'un fluide newtonien afin d'éviter l'apparition d'harmoniques qui viendraient fausser la détermination de la distribution.

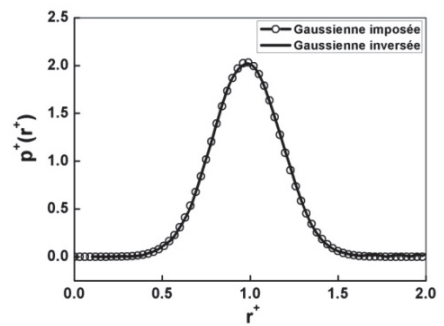


Figure 5 : Restitution de la distribution supposée à partir de la fonction de transfert hydrodynamique (100 points)

### Conclusion

Dans cette communication, nous avons effectué la résolution inverse du problème de l'identification de la distribution de tailles de pores  $p(r)$  par une méthode basée sur une analyse dynamique utilisant un fluide newtonien. L'efficacité de cette technique a été prouvée en l'appliquant à différentes distributions gaussiennes de tailles de pores (uni, bi ou/et tri-modales). Cette technique, est en court de validation expérimentale dans notre équipe (thèse de G. Malvault en préparation). Une fois confirmée, cette procédure pourrait constituer une nouvelle méthode originale, simple et peu chère pour l'industrie pour caractériser un milieu poreux.

### Références

- [1] A. E. Scheidegger, The physics of flow through porous media, 3<sup>ème</sup> éd., University of Toronto Press, 1974.
- [2] F. A. L. Dullien, Porous Media- Fluid Transport and Pore Structure, 2<sup>ème</sup> éd., Academic Press, 1992.
- [3] M. Kaviany, Principles of heat transfert in porous media, 2<sup>ème</sup> éd., Springer, 1995.
- [4] 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*, vol. 73, pp. 373-380, 1951.
- [5] 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, pp. 59-88, 1977.
- [6] H. Tamon et H. Ishizaka, «Saxs study on gelation process in preparation of resorcinol-formaldehyde aerogel», *J. of Colloid and Interface Science*, vol. 206, pp. 577-582, 1998.
- [7] D. Pearson et A. J. Allen, «A study of ultrafine porosity in hydrated cements using small angle neutron scattering», *J. of Material Science*, vol. 20, pp. 303-315, 1985.
- [8] J. M. Haynes, «Stereological analysis of pore structure», *J. Materials and Structures*, vol. 6, pp. 175-179, 1973.
- [9] 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.
- [10] M. Krasnov, A. Kissélev et G. Makarenko, Equations intégrales, Moscou: Editions MIR, 1976.
- [11] J. R. Womersley, «Method for the calculation of velocity, rate of flow and viscous drag in arteries when the pressure gradient is known» *J. Physiol*, vol. 127, pp. 553-563, 1955.