



HAL
open science

Etude expérimentale de la perméabilité relative des matériaux cimentaires et simulation numérique du transfert d'eau dans le béton

Jian Liu

► **To cite this version:**

Jian Liu. Etude expérimentale de la perméabilité relative des matériaux cimentaires et simulation numérique du transfert d'eau dans le béton. Autre. Ecole Centrale de Lille, 2011. Français. NNT : 2011ECLI0018 . tel-00679402

HAL Id: tel-00679402

<https://theses.hal.science/tel-00679402>

Submitted on 15 Mar 2012

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

N° d'ordre : 170

ECOLE CENTRALE DE LILLE

THESE

présentée en vue
d'obtenir le grade de

DOCTEUR

en

Génie Civil

par

Jian LIU

DOCTORAT DELIVRE PAR L'ECOLE CENTRALE DE LILLE

Titre de la thèse

ETUDE EXPERIMENTALE DE LA PERMEABILITE RELATIVE DES
MATERIAUX CIMENTAIRE ET SIMULATION NUMERIQUE DU
TRANSFERT D'EAU DANS LE BETON

Soutenue le 13 décembre 2011 devant le jury d'examen :

Président	M. Jian-Fu SHAO	Professeur, LML/Polytech'Lille
Rapporteur	Mme Myriam CARCASSES	Professeur, IUT A/GC, Toulouse
Rapporteur	M. Christophe GALLE	Docteur/HDR, CEA Saclay
Membre	M. Jean TALANDIER	Docteur/Ingénieur, Andra
Membre	M. Franck AGOSTINI	Maître de conférences, ECLille
Directeur de thèse	M. Frédéric SKOCZYLAS	Professeur, ECLille

Thèse préparée dans le Laboratoire LML
Ecole Doctorale SPI 072
PRES Université Lille Nord-de-France

A ma famille
qui m'a tant donné
et toujours soutenu ...

Table des matières

Table des figures	9
Liste des tableaux	15
Introduction générale	21
I Perméabilité relative et transfert d'eau de matériaux cimentaires	25
I.1 Notions de perméabilité	26
I.1.1 Loi de Dary	26
I.1.2 Perméabilité saturée	27
I.1.3 Perméabilité effective	27
I.1.4 Perméabilité relative	28
I.2 Principes du transfert d'eau	28
I.2.1 Sorption sous humidité relative	28
I.2.2 Imbibition capillaire	37
II Mesure expérimentale de la perméabilité relative au gaz	43
II.1 Matériaux et échantillons	44
II.2 Méthodes de mesure de la perméabilité effective au gaz	45
II.2.1 « Régime Permanent »	45
II.2.2 « Pulse Test »	46
II.2.3 Discussions	47
II.3 Plan de mesure	49
II.4 Résultats et discussions	51
II.4.1 Etat récapitulatif de résultats	51
II.4.2 Porosité et perméabilité saturée	51
II.4.3 Variation de masse sous humidité relative	54
II.4.4 Perméabilité relative au gaz	60
II.5 Conclusion	63

III Essais visant à mesurer la perméabilité relative à l'eau	65
III.1 Matériaux et échantillons	66
III.2 Méthode de mesure de la perméabilité saturée à l'eau	67
III.3 Méthode de mesure de la perméabilité effective à l'eau	68
III.4 Plan de la mesure	69
III.5 Résultats	71
III.5.1 Variation de masse sous humidité relative	71
III.5.2 Perméabilité saturée à l'eau	73
III.5.3 Débit de perméation Q_{cap}	75
III.5.4 Débit de perméation Q_{per}	77
III.6 Conclusion	78
IV Mesure expérimentale de l'imbibition capillaire d'eau	81
IV.1 Matériaux et échantillons	82
IV.2 Mesure de l'imbibition capillaire d'eau sans pression d'injection	82
IV.3 Mesure de l'imbibition capillaire d'eau sous pression d'injection	83
IV.4 Mesure de la perméabilité relative au gaz à différents niveaux d'imbibition capillaire	83
IV.5 Résultats	84
IV.5.1 Influence de la pression d'injection sur l'imbibition capillaire	84
IV.5.2 Sorptivité capillaire	87
IV.5.3 Influence de l'imbibition capillaire sur la perméabilité relative au gaz	91
IV.6 Conclusion	92
V Simulation numérique de transfert d'eau dans le béton	93
V.1 Equations constitutives	94
V.1.1 Equation de conservation de la masse	94
V.1.2 Equation de Kelvin-Laplace	95
V.1.3 Modèle de rétention	96
V.1.4 Modèle de perméabilité relative	101
V.2 Essais expérimentaux pour la simulation	107
V.2.1 Essai de désorption d'eau sous humidité relative de 50%	107
V.2.2 Essai d'imbibition capillaire sans pression d'injection	107
V.2.3 Essai d'adsorption d'eau sous humidité relative de 100%	107
V.2.4 Essai d'imbibition capillaire sous pression d'injection	107
V.3 Simulation selon la théorie de diffusion	107
V.3.1 Modèle géométrique	108
V.3.2 Hypothèses et equations	110
V.3.3 Résultats	111
V.3.4 Conclusion partielle	114

V.4 Simulation selon l'équation de Richards	115
V.4.1 Logiciel « Code_Aster »	115
V.4.2 Hypothèses et équations	115
V.4.3 Prétraitements	117
V.4.4 Résultats	122
V.4.5 Conclusion partielle	127
V.5 Conclusion	127
Conclusion générale	129
Bibliographie	133
A Le code de la méthode des moindres carrés	141
B Effet de la forme de section et effet de la tortuosité sur l'imbibition capillaire du béton	147
B.1 Rayon équivalent d'un tube avec section non-circulaire	147
B.1.1 Rayon équivalent dans le test d'intrusion de mercure	148
B.1.2 Rayon équivalent dans l'équation de Hagen-Poiseuille	148
B.1.3 Discussions	149
B.2 Equation de Lucas-Washburn considérant l'effet de la tortuosité et l'effet de la circularité de section	149
B.2.1 Equation de Lucas-Washburn d'un tube courbé	149
B.2.2 Sorption capillaire d'un béton contenant tubes courbés	150
B.2.3 Discussions	151
Remerciements	153
Résumé	155
Abstract	157

TABLE DES MATIÈRES

Table des figures

1	Centre de stockage de déchets faiblement et moyennement radioactifs de l'Aube [<i>Andra (2005a)</i> , <i>Andra (2009c)</i>]	21
2	Capteur pulse utilisé dans la mesure "in-situ"	22
3	Schématisation d'une architecture de stockage à 500m sous terre [<i>Andra (2005a)</i> , <i>Andra (2005b)</i>]	23
4	Représentation des sollicitations auxquelles sera soumis le site de stockage souterrain (T - Thermique, H - Hydraulique, C - Chimique, M - Mécanique) [<i>Andra (2005b)</i>]	24
I.1	Transfert d'eau dans un milieu poreux sous gradient de pression	26
I.2	Transfert d'eau à cause de la diffusion	28
I.3	Schématisation de mesure de la pression saturante de vapeur $p_{v,s}$: (a) un contenant rempli par l'air sec ; (b) de l'eau est injectée dans le contenant étanché et des molécules d'eau échappent de la surface d'eau liquide à l'air ; (c) lorsque l'évaporation et la condensation sont équilibrées, la pression vapeur de l'air est la pression saturante de vapeur ; (d) la relation entre la pression saturante et la température. [<i>Grasley et al. (2006)</i>]	30
I.4	Pression de vapeur au-dessus de ménisque : (a) air sec au-dessus du ménisque concave ; (b) à l'état de l'équilibre dynamique, la pression de vapeur $p_{v,m}$ est moins que la pression saturante $p_{v,s}$	31
I.5	L'énergie nécessaire et les directions potentielles pour l'évasion des molécules de surface d'un liquide sont des fonctions de la forme de ménisque. Pour le ménisque concave (a), il faut plus d'énergie et moins de direction possible d'évasion que pour les deux autres cas [<i>Grasley et al. (2006)</i>]	31
I.6	Milieu poreux avec tubes parallèles sous une humidité relative ambiante fixe	32
I.7	Milieux poreux avec des tubes croisés sous humidité relative	33
I.8	Schématisation du processus d'adsorption lorsque l'humidité relative ambiante augmente [<i>Collet et al. (2011)</i>]	34
I.9	Schématisation du processus de désorption lorsque l'humidité relative ambiante diminue [<i>BAROGEL-BOUNY (1994)</i> , citée par <i>Billard (2003)</i>]	34

TABLE DES FIGURES

I.10	Sorption sous humidité relative v.s. rayon du pore [<i>Krus (1996)</i>]	35
I.11	Isotherme de sorption d'un béton [<i>Zouloaga et al. (2009)</i>]	36
I.12	Différents types de pores dans le béton [<i>Ishida et al. (2007)</i>]	36
I.13	Effet de "Inkbottle" sur la sorption sous humidité relative [<i>Ishida et al. (2007)</i>]	37
I.14	Imbibition capillaire dans un tube	38
I.15	Imbibition capillaire d'un milieu poreux avec tubes parallèles	39
I.16	Résultat d'un test d'intrusion de mercure d'un béton [<i>Kumar et Bhattacharjee (2004)</i>]	40
I.17	Schématisation de variation de la teneur d'eau d'un milieu poreux dans le processus d'imbibition capillaire selon le modèle géométrique de tubes parallèles. θ_s est la teneur d'eau maximale, t est le temps, H est la hauteur de l'échantillon	41
I.18	Variation de la teneur d'eau d'un béton dans le processus d'imbibition capillaire [<i>V. Picandet (2008)</i>]	41
I.19	Imbibition capillaire d'un milieu poreux avec des tubes croisés	42
II.1	Echantillons : (a) Béton de Soulaines ; (b) Mortier de référence	44
II.2	Système expérimental utilisé pour le « Régime Permanent »	45
II.3	Système expérimental utilisé pour le « Pulse Test »	47
II.4	Comparaison des résultats de « Régime Permanent » et de « Pulse Test » par 3 échantillons du béton de Soulaines	48
II.5	Échantillons sous différentes humidités relatives	49
II.6	Variation de masse relative d'un béton sous différentes humidités relatives [<i>Poyet (2009)</i>]	50
II.7	Porosité et perméabilité saturée au gaz des échantillons du mortier de référence	51
II.8	Porosité et perméabilité saturée au gaz des échantillons du béton de Soulaines	54
II.9	Variation de masse relative du mortier de référence sous différentes humidités relatives	55
II.10	Variation de masse relative du béton de Soulaines sous différentes humidités relatives	55
II.11	Perméabilité intrinsèque au gaz et paramètre c du mortier de référence	58
II.12	Coefficient de diffusion en fonction de l'humidité relative [<i>Pavlik et al. (2011)</i>]	58
II.13	Isotherme de sorption à base du m_f	59
II.14	Effet du rapport eau-ciment sur la distribution de taille de pores [<i>Mehta et Monteiro (2006)</i>]	60
II.15	Perméabilité relative au gaz en fonction de la saturation en eau	61

II.16	Perméabilité relative au gaz d'un béton [<i>Monlouis-Bonnaire et al. (2004)</i>]	61
II.17	Distribution de porosité du mortier de référence et du béton de Soulaines (Test de porosimétrie de mercure)	62
III.1	Echantillons : (a) Béton CEM I; (b) Béton CEM V	66
III.2	Système de mesure de la perméabilité saturée à l'eau	67
III.3	Schématisation du double test de la perméabilité effective à l'eau	68
III.4	Schématisation de mesure du débit Q_{cap}	70
III.5	Variation de masse relative du béton CEM I sous différentes humidités relatives	71
III.6	Variation de masse relative du béton CEM V sous différentes humidités relatives	72
III.7	Valeurs du paramètre c qui se rapporte au coefficient de diffusion D . . .	73
III.8	Perméabilité saturée à l'eau du béton CEM I	74
III.9	Perméabilité saturée à l'eau du béton CEM V	74
III.10	Débit dû à la capillarité Q_{cap} du béton CEM I	75
III.11	Débit dû à la capillarité Q_{cap} du béton CEM V	76
III.12	Débit dû à la capillarité Q_{cap} du béton CEM I au début de la mesure . .	76
III.13	Débit dû à la capillarité Q_{cap} du béton CEM V au début de la mesure . .	77
III.14	Porosités des échantillons	77
IV.1	Essai d'imbibition capillaire sans pression d'injection	82
IV.2	Essai d'adsorption sous humidité relative de 100%	83
IV.3	Imbibition capillaire sans et avec pression d'injection (béton CEM I) . . .	84
IV.4	Imbibition capillaire sans et avec pression d'injection (béton CEM V) . .	85
IV.5	Distribution de taille de pores des bétons CEM I et CEM V (résultats du test d'intrusion de mercure)	85
IV.6	Imbibition capillaire sans et avec pression d'injection sur échantillon sec pendant une semaine(CEM I)	86
IV.7	Imbibition capillaire sans et avec pression d'injection sur échantillon sec pendant une semaine(CEM V)	86
IV.8	Sorption capillaire des bétons CEM I et CEM V (la première heure) . . .	88
IV.9	Sorption capillaire du mortier de référence et du béton de Soulaines (la première heure)	88
IV.10	Sorption capillaire des bétons CEM I et CEM V	89
IV.11	Sorption capillaire du mortier de référence et du béton de Soulaines . . .	89
IV.12	Sorption capillaire d'un béton (<i>Martys et Ferraris (1997)</i>)	90
IV.13	Modélisation de l'imbibition capillaire, basée sur le modèle de tubes parallèles	90

IV.14	Effet de l'imbibition capillaire sur la perméabilité relative au gaz des bétons CEM I et CEM V	91
V.1	Isotherme de sorption du béton CEM I et le modèle de van Genuchten (Les valeurs des paramètres du modèle de van Genuchten sont présentées dans le tableau V.1)	97
V.2	Isotherme de sorption du béton CEM V et le modèle de van Genuchten (Les valeurs des paramètres du modèle de van Genuchten sont présentées dans le tableau V.1)	97
V.3	Isotherme de sorption du béton CEM I et le double modèle de rétention .	99
V.4	Isotherme de sorption du béton CEM V et le double modèle de rétention	99
V.5	Distribution de taille de pores du béton CEM I et du béton CEM V . . .	100
V.6	Modèle de l'entrée et de la sortie d'eau des interpores entre les cristaux de C-S-H [<i>Feldman (1968), Feldman et Sereda (1970)</i>]	101
V.7	Perméabilité relative au gaz du béton CEM I	104
V.8	Perméabilité relative au gaz du béton CEM V	105
V.9	Perméabilité relative à l'eau du béton CEM I	105
V.10	Perméabilité relative à l'eau du béton CEM V	106
V.11	Comparaison des perméabilités relatives à l'eau respectivement déterminées par l'isotherme de désorption et par le test d'intrusion de mercure .	106
V.12	Essai de désorption d'eau sous humidité relative de 50%	107
V.13	Modèle unidimensionnel et symétrique : L est la moitié de hauteur de l'échantillon	108
V.14	Transformation de l'essai d'imbibition capillaire sans pression d'injection en problèmes symétriques	109
V.15	Simulation de l'essai de désorption sous humidité relative de 50%	112
V.16	Simulation de l'essai d'adsorption sous humidité relative de 100%	112
V.17	Simulation de la partie adsorption de l'essai d'imbibition capillaire sans pression d'injection	113
V.18	Simulation de la partie imbibition capillaire de l'essai d'imbibition capillaire sans pression d'injection	113
V.19	Valeurs du coefficient de diffusion D de la désorption et de l'adsorption [<i>Baroghel-Bouny (2007)</i>]	114
V.20	Modèle géométrique de simulation numérique	118
V.21	Maillage des éléments finis	118
V.22	Influence de variation de la longueur d'élément sur le résultat	119
V.23	Influence de variation de la hauteur d'élément sur le résultat	119
V.24	Influence de la variation d'intervalle de temps sur le résultat	120
V.25	Simulation de désorption sous HR50% du béton CEM I	122
V.26	Simulation de désorption sous HR50% du béton CEM V	122

V.27 Simulation d'adsorption sous HR100% du béton CEM I 123

V.28 Simulation d'adsorption sous HR100% du béton CEM V 123

V.29 Simulation des essais d'imbibition capillaire sans et avec pression d'injection du béton CEM I 124

V.30 Simulation des essais d'imbibition capillaire sans et avec pression d'injection du béton CEM V 124

V.31 Simulation d'imbibition capillaire sans pression d'injection du béton CEM I 125

V.32 Simulation d'imbibition capillaire sans pression d'injection du béton CEM V 125

V.33 Les premier 100 secondes de la simulation des essais d'imbibition capillaire sans et avec pression d'injection pour le béton CEM I 126

V.34 Simulation de désorption sous humidité relative 50% 131

B.1 Transformation de section non-circulaire à section circulaire 147

B.2 Transformation de section non-circulaire à section circulaire 148

B.3 Transformation de section non-circulaire à section circulaire 150

Liste des tableaux

II.1	Formulations des matériaux [Andra (2008)]	44
II.2	Résultats du mortier de référence	52
II.3	Résultats du béton de Soulaines	53
II.4	Valeurs des paramètres m_f et c du mortier de référence	57
II.5	Valeurs des paramètres m_f et c du béton de Soulaines	57
II.6	Valeurs des paramètres du modèle de van Geunuchten-Mualem	62
III.1	Formulations des matériaux - béton CEM I et béton CEM V [Andra (2001a) , Andra (2001b)]	66
III.2	Valeurs des paramètres m_f et c dans la simulation du béton CEM I	72
III.3	Valeurs des paramètres m_f et c dans la simulation du béton CEM V	72
III.4	Différence entre la masse après la mesure de la perméabilité à l'eau et la masse avant la mesure ($m_{apres} - m_{avant}$)	75
III.5	m_1 - Masse initiale d'échantillon de la mesure de Q_{cap} ; m_2 - Masse initiale d'échantillon de la mesure de $Q_{per} + Q_{cap}$; Q_{per} - Débit de perméation	78
IV.1	Coefficients de sorption capillaire	87
V.1	Valeurs des paramètres du modèle de van Genuchten	98
V.2	Valeurs des paramètres du double-modèle de rétention	100
V.3	Conditions aux limites de l'essai de désorption sous humidité relative de 50%	110
V.4	Valeur du paramètre D déterminée par la méthode des moindres carrés	114
V.5	Valeurs des paramètres généraux	117
V.6	Influence d'intervalles de temps	120
V.7	Conditions initiales et conditions aux limites	121

Liste des symboles

Δp_1	chute de pression du réservoir R_1 (Pa)	46
$\Delta p_{1,2}$	écart de pression entre deux réservoirs (Pa)	47
Δp_{ini}	surpression initiale dans la méthode « Pulse Test » (Pa)	47
Δt	intervalle de temps (s)	46
η	paramètre du modèle de van Genuchten-Mualem (-)	61
γ	tension superficielle de l'interface entre l'eau et l'air ($\text{N}\cdot\text{m}^{-1}$)	37
μ	viscosité dynamique de fluide ($\text{P}\cdot\text{s}$)	26
μ_g	viscosité dynamique de gaz ($\text{Pa}\cdot\text{s}$)	46
μ_w	viscosité dynamique d'eau ($\text{Pa}\cdot\text{s}$)	67
∇	opérateur de gradient (-)	26
ω_1	fraction volumique de la première système de pores (-)	97
ω_2	fraction volumique de la deuxième système de pores (-)	97
ρ_w	masse volumique d'eau ($\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$)	37
θ	angle entre l'interface du fluide et la paroi du tube capillaire (-)	37
θ_r	teneur en eau résiduelle (-)	94
θ_s	teneur en eau à l'état saturé (-)	94
θ_w	teneur en eau (-)	94
φ	porosité (-)	38
A	aire de la section transversale de l'échantillon poreux (m^2)	26
A_r	aire de la section transversale du tube dont le rayon est égal à r (m^2)	101
C	concentration des molécules ($\text{mol}\cdot\text{m}^{-3}$)	29
D	coefficient de diffusion ($\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$)	29
$F(r_i)$	fraction volumique des tubes dont le rayon est égal à r_i (-)	38
F^m	facteur de pesanteur (-)	95
$F_{cum}(r)$	fraction volumique des pores dont le rayon est égal ou inférieur à r (-)	98
g	accélération de pesanteur ($\text{m}\cdot\text{s}^{-2}$)	37
H	hauteur de l'échantillon (m)	46
h	pression hydraulique (m)	26
h_c	hauteur de la colonne d'eau formée par capillarité (m)	37
HR	humidité relative (-)	29
HR_m	humidité relative au dessus du ménisque (-)	30
J	flux de molécule ($\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$)	29
K	conductivité hydraulique ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$)	26
k	perméabilité (m^2)	26
$k_{g,e,XX}$	perméabilité effective au gaz de l'échantillon prétraité sous humidité relative XX% (m^2)	51
$k_{g,e}$	perméabilité effective au gaz (m^2)	28

LISTE DES SYMBOLES

$k_{g,i,XX}$	perméabilité au gaz à l'état sec de l'échantillon prétraité sous humidité relative XX% (m^2)	51
$k_{g,i}$	perméabilité au gaz à l'état sec (m^2)	28
$k_{g,r,XX}$	perméabilité relative au gaz de l'échantillon prétraité sous humidité relative XX% (-)	51
$k_{g,r}$	perméabilité relative au gaz (-)	28
k_g	perméabilité au gaz (m^2)	46
$k_{w,e}$	perméabilité effective à l'eau (m^2)	28
$k_{w,i}$	perméabilité à l'eau à l'état sec (m^2)	28
$k_{w,j}$	perméabilité effective à l'eau à la saturation $S_{w,j}$ (m^2)	102
$k_{w,r}$	perméabilité relative à l'eau (-)	28
L	longueur du passage de fluide (m)	26
m	paramètre du modèle de van Genuchten (-)	60
m_1	paramètre du double modèle de van Genuchten (-)	97
m_2	paramètre du double modèle de van Genuchten (-)	97
m_e	masse d'eau traversant la surface de l'échantillon (kg)	56
m_f	masse d'eau finale traversant la surface de l'échantillon (au temps $t = \infty$) (kg)	56
$m_{e,XX}$	masse stable de l'échantillon sous humidité relative XX% (kg)	51
$m_{sc,XX}$	masse à l'état sec de l'échantillon prétraité sous humidité relative XX% (kg)	50
$m_{st,XX}$	masse à l'état saturé en eau de l'échantillon prétraité sous humidité relative XX% (kg)	50
n_1	paramètre du double modèle de van Genuchten (-)	97
n_2	paramètre du double modèle de van Genuchten (-)	97
p	pression de fluide (Pa)	26
p_1	pression de référence de la première famille de pores (-)	97
p_2	pression de référence de la deuxième famille de pores (-)	97
p_c	pression capillaire (Pa)	60
p_r	paramètre du modèle de van Genuchten (Pa)	60
p_w	pression d'eau (Pa)	95
p_{atm}	pression atmosphérique (Pa)	46
p_{ini}	pression initial (Pa)	47
p_{inj}	pression d'injection de gaz (Pa)	46
p_{int}	pression intérieure dans l'échantillon (Pa)	46
p_i	pression d'injection d'eau (Pa)	67
p_{moy}	pression d'injection moyenne dans la méthode « Régime Permanent » (Pa)	46
$p_{v,a}$	pression de vapeur dans l'air atmosphérique (Pa)	29
$p_{v,m}$	pression de vapeur au-dessus du ménisque (Pa)	30
$p_{v,s}$	pression de vapeur au dessus de la surface plate d'eau (Pa)	29
Q	débit d'eau ($m \cdot s^{-1}$)	26
Q_r	débit d'eau dans le tube dont le rayon est égal à r ($m \cdot s^{-1}$)	101
Q_{cap}	débit d'eau par capillarité ($m \cdot s^{-1}$)	69
Q_{moy}	débit moyen dans la méthode « Régime Permanent » ($m \cdot s^{-1}$)	46
Q_{per}	débit d'eau par perméation ($m \cdot s^{-1}$)	69
R	constante des gaz parfaits ($J \cdot mol^{-1} \cdot K^{-1}$)	60
r	rayon du tube (m)	37
r_e	rayon équivalent du milieu poreux (m)	39
R_s	rayon de la sphère (m)	56
s	coefficient de l'imbibition capillaire ($m \cdot s^{-1/2}$)	39

S_f	saturation finale de l'échantillon sous humidité relative (au temps $t = \infty$) (-)	58
S_w	saturation en eau (-)	60
S_r	saturation résiduelle (-)	116
$S_{w,imp}$	saturation imposé sur l'échantillon (condition aux limites) (-)	110
$S_{w,ini}$	saturation initiale de l'échantillon (condition initiale) (-)	110
$S_{w,j}$	saturation du milieu poreux lorsque tous les pores dont le rayon est inférieur à r_j sont saturés en eau (-)	102
$S_{w,XX}$	saturation stable de l'échantillon sous humidité relative XX% (-)	51
T	température (K)	60
V_1	volume du réservoir R_1 (m^3)	46
V_2	volume du réservoir R_2 (m^3)	47
V_m	volume molaire de l'eau liquide ($m^3 \cdot mol^{-1}$)	60
$V_{cap,HR}$	volume d'eau entrant à l'échantillon dans l'essai d'imbibition capillaire sans pression d'injection (m^3)	83
V_{cap}	volume d'eau entrant dans l'échantillon à cause de la capillarité (m^3)	38
V_{ech}	volume de l'échantillon (m^3)	50
V_{ent}	volume d'eau entrant à l'échantillon (m^3)	111
$V_{HR,HR}$	volume d'eau entrant à l'échantillon dans l'essai d'adsorption sous humidité relative 100% (m^3)	83
V_{HR}	moitié du volume d'eau entrant à l'échantillon dans l'essai d'adsorption sous humidité relative 100% (m^3)	108
V_{i-0}	volume d'eau injecté dans le cas I du double-test de mesure de la perméabilité effective à l'eau (m^3)	69
V_{i-i}	volume d'eau injecté dans le cas II du double-test de mesure de la perméabilité effective à l'eau (m^3)	69
V_i	volume d'eau injecté sous une pression d'injection d'eau p_i (m^3)	67

Introduction générale

On a bien profité (en même temps, bien souffert aussi) des nombreuses utilisations de propriétés de la radioactivité depuis le début du 20^{ème} siècle. Les centrales nucléaires (presque 14% de l'électricité dans le monde est produite par l'énergie nucléaire [[IAEA \(2010\)](#)]), la médecine nucléaire, etc. Mais ces utilisations produisent une grande quantité de déchets radioactifs. Par exemple, environ 2 kg de déchets radioactifs sont produits par an et par habitant en France [[Andra \(2009a\)](#)]. Ces déchets radioactifs ne peuvent pas être réutilisés, mais ils peuvent encore émettre des rayonnements potentiellement dangereux pour l'homme et l'environnement. En France, les déchets radioactifs sont classifiés par le niveau de radioactivité et la période radioactive : les déchets de haute activité (HA), les déchets de moyenne activité à vie longue (MA-VL), les déchets de faible et moyenne activité à vie courte (FMA-VC), les déchets de faible activité à vie longue (FA-VL) et les déchets de très faible activité (TFA) [[Andra \(2009b\)](#)]. Ils sont gérés de différentes manières par l'Andra (Agence Nationale de gestion des Déchets RadioActifs).



FIGURE 1 – Centre de stockage de déchets faiblement et moyennement radioactifs de l'Aube [[Andra \(2005a\)](#), [Andra \(2009c\)](#)]

La figure 1 montre un centre de stockage de déchets de faible et moyenne radioactivité à vie courte (FMA-VC). Dans ce centre, les ouvrages en béton sont exposés en surface.

Alors l'évolution de saturation en eau du béton est entraînée par la variation de l'humidité relative de l'air. Cette évolution de saturation peut nuire à la durabilité des ouvrages. Par exemple, la désaturation augmente la perméabilité au gaz qui permet l'échange de gaz entre les ouvrages et l'environnement. Par ailleurs, la désaturation peut indiquer le retrait du béton qui produit probablement la micro-fissuration. Alors la surveillance de l'évolution de saturation in-situ est nécessaire pour prévoir et évaluer la durabilité des ouvrages. Mais peu de techniques fiables et non-destructives sont disponibles. Donc, l'Andra et l'EDF (Electricité de France) ont initié une étude visant à tester et vérifier différents dispositifs de mesure de saturation in-situ pour le béton dans ce centre et un mortier de référence. Un des dispositifs est développé par notre laboratoire, basé sur la mesure in-situ de la saturation en eau qui est liée à perméabilité au gaz, qui a été installé dans le centre de stockage de déchets faiblement et moyennement radioactifs de l'Aube (Figure 1) pour surveiller la saturation en eau des ouvrages sur de longues périodes (plusieurs dizaines d'année), voir Figure 2 [Duan et al. (2011)]. La perméabilité au gaz in-situ est directement mesurée par un capteur pulse pré-installé dans le béton [Duan et al. (2011), Chen et al. (2009), Loosveldt et al. (2002)]. Alors pour appliquer ce système in-situ, il est nécessaire de déterminer la relation entre la perméabilité au gaz et la saturation en eau. Donc, le chapitre II de ce mémoire de thèse détaille les mesures en salle de la perméabilité au gaz en fonction de saturation pour ce même béton et un mortier de référence (qui est utilisé pour vérifier l'efficacité du système in-situ). Les matériaux ont été désaturés sous différentes humidités relatives et alors la perméabilité au gaz est mesurée à différents niveaux de saturation en eau.

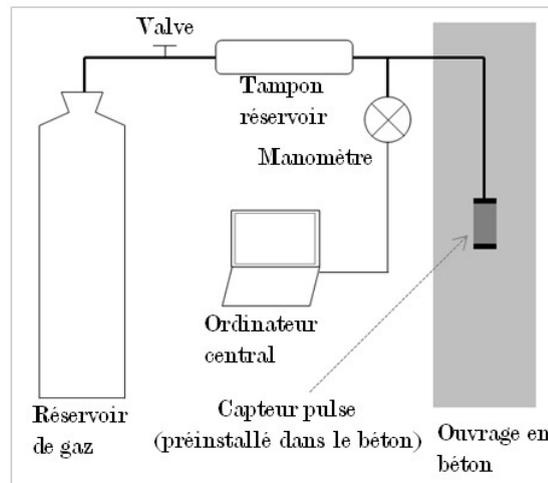


FIGURE 2 – Capteur pulse utilisé dans la mesure "in-situ"

Pour les déchets de haute radioactivité ou les déchets moyennement radioactifs à vie longue (HA ou MA-VL), un projet de stockage profond est à l'étude, voir Figure 3. Dans le stockage profond, les matériaux cimentaires seront aussi très largement utilisés et ils

seront soumis à différentes sollicitations, voir Figure 4. Les matériaux cimentaires constituant les ouvrages subiront une désaturation puis une resaturation. La désaturation est provoquée par les systèmes de ventilation utilisés pendant le remplissage de l'ouvrage. Cette désaturation est provoquée par la désorption sous humidité relative. Par la suite, les apports d'eau par le massif d'argilite entraîneront la resaturation du béton. Cette reprise s'effectue par la perméation d'eau et l'imbibition capillaire. Donc, il est essentiel d'étudier le transfert d'eau dans les matériaux cimentaires qui seront mis en œuvre dans le stockage profond.

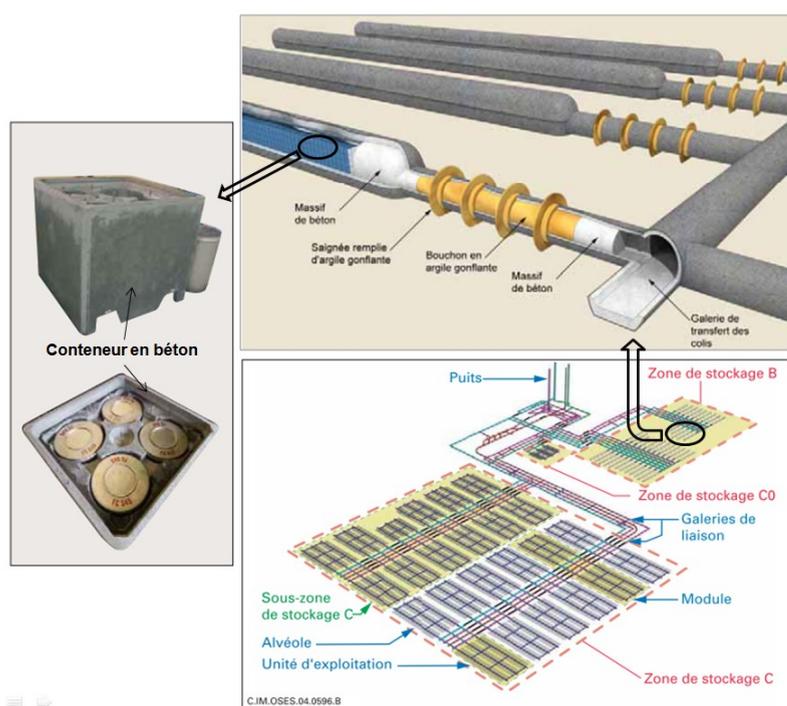


FIGURE 3 – Schématisation d'une architecture de stockage à 500m sous terre [Andra (2005a), Andra (2005b)]

Ainsi, le second but de cette thèse est d'analyser les propriétés de transfert d'eau dans deux bétons qui seront mis en œuvre dans l'ouvrage de stockage profond (Figure 3). Dans le chapitre III, on a abordé le problème de la mesure de perméabilité relative à l'eau. Différentes saturations ont d'abord été obtenues par la même technique présentée dans le chapitre II. Une méthode originale de mesure de la perméabilité effective à l'eau a été effectuée mais elle n'a pas réussi à isoler l'écoulement dû à la perméation de l'écoulement par capillarité. Ensuite, les échantillons ont été complètement saturés et leur perméabilité intrinsèque à l'eau a été mesurée. Le chapitre IV a été consacré aux mesures de l'imbibition capillaire des deux bétons. L'imbibition capillaire d'eau de matériau sec, sans ou sous pression d'injection, a été testée. Par ailleurs, l'influence de l'imbibition capillaire sur la perméabilité relative au gaz a été étudiée. Au chapitre V, la courbe de la perméabilité

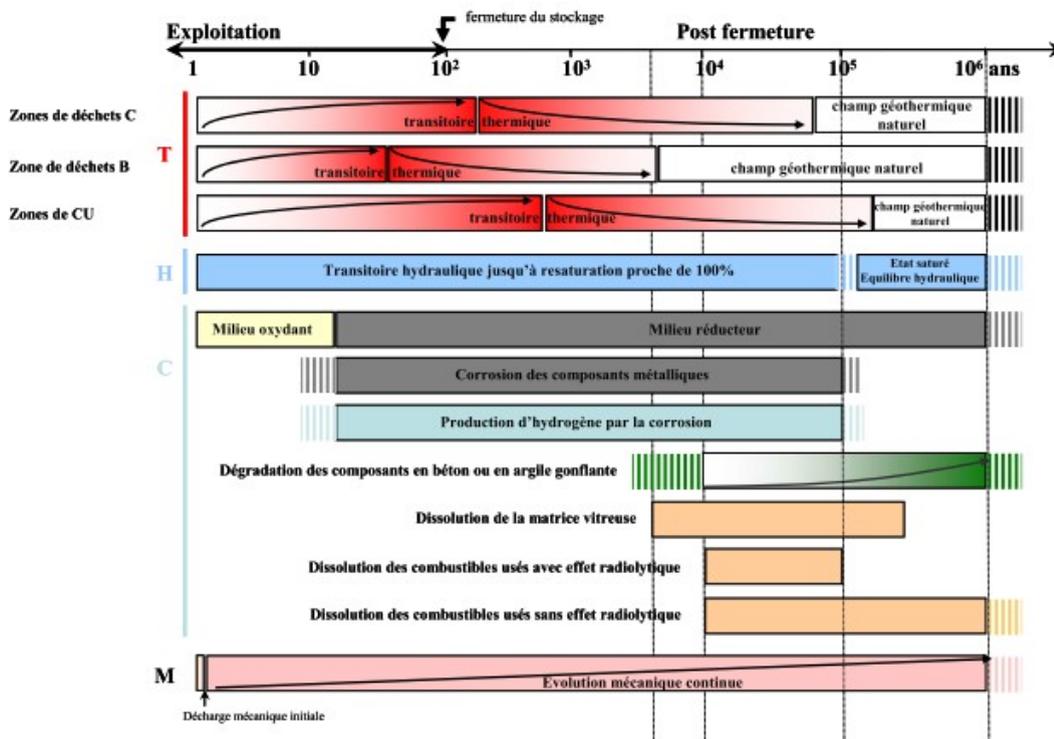


FIGURE 4 – Représentation des sollicitations auxquelles sera soumis le site de stockage souterrain (T - Thermique, H - Hydraulique, C - Chimique, M - Mécanique) [Andra (2005b)]

relative au gaz et à l'eau a été déduite, basée sur les résultats expérimentaux de l'isotherme de sorption. On a ensuite proposé de simuler le processus du transfert d'eau dans les bétons : l'adsorption et la désorption sous humidité relative et l'imbibition capillaire.

Chapitre I

Perméabilité relative et transfert d'eau de matériaux cimentaires

Introduction

Dans ce chapitre, les notions de la perméabilité relative et les principes du transfert d'eau dans les matériaux cimentaires sont expliqués et discutés.

Les définitions de la perméabilité, de la perméabilité effective, de la perméabilité relative au gaz et à l'eau sont d'abord données. Et puis, deux types de transfert d'eau, la sorption sous humidité relative et l'imbibition capillaire, sont respectivement présentées. Les principes de sorption sous humidité relative et les cinétique d'imbibition capillaire dans un tube fin, dans un milieu poreux avec tubes parallèles, dans un milieu poreux avec tubes croisés et dans les matériaux cimentaires sont présentés et discutés

I.1 Notions de perméabilité

I.1.1 Loi de Darcy

Si on applique un gradient de pression d'eau $\Delta h/L$ sur un milieu poreux qui est complètement saturé par l'eau, l'eau s'écoulera par les pores connectés, voir Figure I.1. On suppose que la vitesse moyenne d'écoulement Q/A (le débit total sur la section) est proportionnelle au gradient de pression $\Delta h/L$ [Darcy (1856)]

$$\frac{Q}{A} = -K \frac{\Delta h}{L} \quad (\text{I.1})$$

où K est la conductivité hydraulique (en $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$). Elle correspond à la capacité du milieu poreux à se laisser traverser par l'eau via les pores connectés.

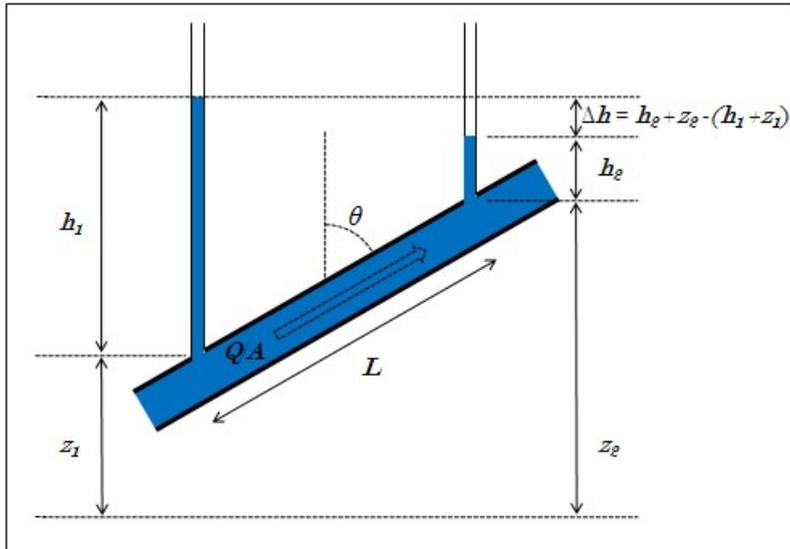


FIGURE I.1 – Transfert d'eau dans un milieu poreux sous gradient de pression

La loi de Darcy s'emploie aussi à la description de l'écoulement du gaz dans un milieu poreux [Muskat et Wyckoff (1937), Dana et Skoczylas (1999), Lion (2004), Ho et Webb (2006)]. Mais l'équation initiale de Darcy (équation I.1) est exprimée par la pression hydraulique qui ne convient pas au cas de gaz. Donc, une autre forme plus générale de la loi de Darcy, qu'on utilise dans cette thèse, est exprimée par la pression p et la perméabilité intrinsèque k [Muskat et Wyckoff (1937)]

$$\frac{Q}{A} = -\frac{k}{\mu} \nabla p \quad (\text{I.2})$$

où μ est la viscosité dynamique de fluide, ∇ représente l'opérateur de gradient, p est la

pression de fluide, k est la perméabilité (en m^2). Dans le cas de l'eau, $k = K\mu/(\rho g)$, ρ est la masse volumique d'eau et g est l'accélération de pesanteur.

I.1.2 Perméabilité saturée

Théoriquement, lorsqu'on considère l'écoulement monophasique dans un milieu poreux, la perméabilité k est une caractéristique intrinsèque et appelée la perméabilité intrinsèque, qui doit être indépendante de fluide. Donc, la perméabilité intrinsèque au gaz et la perméabilité intrinsèque à l'eau devraient être identiques mais la non neutralité chimique de l'eau vis à vis du béton et l'effet de Klinkenberg sur la perméabilité au gaz font que elles ne coïncident pas. Les résultats expérimentaux indiquent que la perméabilité intrinsèque au gaz est souvent au moins 10 fois plus grande que la perméabilité intrinsèque à l'eau pour les matériaux poreux [*Tsivilis et al. (2005)*, *Davy et al. (2007)*, *Tanikawa et Shimamoto (2009)*]. Si on change de liquide éthanol, par exemple, on peut retrouver des perméabilités du même ordre de grandeur entre la perméabilité au gaz et à l'éthanol [*Loosveldt et al. (2002)*].

Donc, pour décrire plus clairement ce qu'on a fait dans ce mémoire de thèse, la perméabilité dans le cas de l'écoulement monophasique est dans cette thèse appelée la perméabilité saturée au lieu de la perméabilité intrinsèque. La perméabilité au gaz de matériaux cimentaires secs est appelée la perméabilité saturée au gaz $k_{g,i}$. La perméabilité à l'eau de matériaux saturés en eau est appelée la perméabilité saturée

I.1.3 Perméabilité effective

Les matériaux cimentaires sont souvent partiellement saturés en eau : des pores sont occupés par l'eau et les autres sont occupés par l'air.

Lorsqu'on applique un gradient de pression de gaz sur un matériau partiellement saturé en eau, le gaz s'écoule par les pores remplis par l'air. Cela donne une perméabilité au gaz plus faible que la perméabilité saturée au gaz car des passages de gaz par les pores remplis d'eau sont empêchés. Cette perméabilité est appelée la perméabilité effective au gaz $k_{g,e}$. La perméabilité effective au gaz $k_{g,e}$ diminue lorsque la saturation en eau S_w augmente, car l'augmentation de saturation en eau est liée à la diminution de passages de gaz.

Lorsqu'on applique un gradient de pression d'eau sur un matériau partiellement saturé en eau, la condition devient plus compliquée que pour le gaz. D'une part, l'eau s'écoule par les pores déjà remplis par l'eau à cause du gradient de pression. Le débit d'eau par ces pores est noté Q_{per} . D'autre part, l'eau va entrer dans les pores remplis par l'air à cause de la capillarité (ce phénomène est détaillé dans la section I.2.2) et le débit d'eau dû à la capillarité est noté Q_{cap} . On suppose que le débit Q_{cap} ne contribue pas à la perméabilité effective à l'eau qui serait donnée justement par le débit Q_{per} .

I.1.4 Perméabilité relative

La perméabilité relative est le ratio de la perméabilité effective sur la perméabilité saturée. On définit ainsi :

La perméabilité relative au gaz

$$k_{g,r} = \frac{k_{g,e}}{k_{g,i}} \quad (\text{I.3})$$

La perméabilité relative à l'eau

$$k_{w,r} = \frac{k_{w,e}}{k_{w,i}} \quad (\text{I.4})$$

Un des buts de cette thèse est de mesurer la perméabilité relative au gaz $k_{g,r}$ et la perméabilité relative à l'eau $k_{w,r}$ des matériaux cimentaires. La perméabilité relative est évidemment une fonction de la saturation en eau donc contrôlée par le transfert d'eau.

I.2 Principes du transfert d'eau

I.2.1 Sorption sous humidité relative

a) Loi de Fick

Les molécules d'eau dans la vapeur tendent toujours à se déplacer des régions de haute concentration aux régions de basse concentration, voir Figure I.2. Ce phénomène s'appelle la diffusion et on suppose que le flux de molécules est proportionnel au gradient de concentration [*Crank (1975)*]

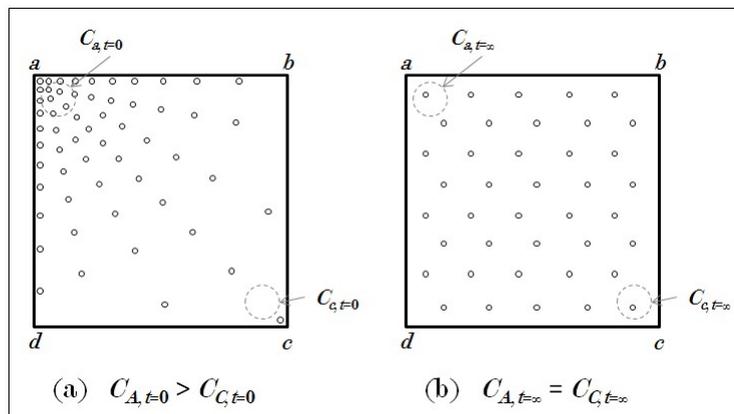


FIGURE I.2 – Transfert d'eau à cause de la diffusion

Première loi de Fick

$$J = -D\nabla C \quad (\text{I.5})$$

Deuxième loi de Fick

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \text{div}(D\nabla C) \quad (\text{I.6})$$

où J est le flux de molécules, D est le coefficient de diffusion (ou la diffusité), C est la concentration de molécules.

b) Humidité relative de l'air

L'humidité relative HR de l'air est le rapport entre la pression actuelle de vapeur $p_{v,a}$ dans l'air et la pression saturante de vapeur $p_{v,s}$

$$HR = \frac{p_{v,a}}{p_{v,s}} \quad (\text{I.7})$$

où $p_{v,s}$ est la pression de vapeur dans l'air qui est en contact avec l'eau pure. Elle ne dépend que de la température, voir Figure I.3.

Des molécules d'eau sur la surface d'eau liquide ont une énergie cinétique suffisante pour s'échapper de la surface de l'eau liquide. Ce phénomène s'appelle l'évaporation. Simultanément, des molécules d'eau dans l'air se condensent sur l'eau liquide. C'est la condensation. Enfin un équilibre dynamique se formera entre l'évaporation et la condensation et la pression de vapeur dans l'air arrivera à la valeur maximale. Cette valeur maximale est précisément la pression saturante de vapeur $p_{v,s}$.

Lorsqu'on remplace l'eau pure par une solution saline, des ions salins remplacent des molécules d'eau sur la surface du liquide. Alors la concentration des molécules d'eau sur la surface du liquide diminue par rapport au cas de l'eau pure. Donc, à l'état de l'équilibre dynamique, la pression de vapeur dans l'air est moindre que celle dans le cas de l'eau pure. Cela désigne que l'humidité relative au-dessus d'une solution saline est inférieure à 100%. Par ailleurs, différentes solutions salines donnent différentes concentrations de molécules d'eau. Donc on peut obtenir différentes humidités relatives par différentes solutions salines [*Greenspan (1977)*].

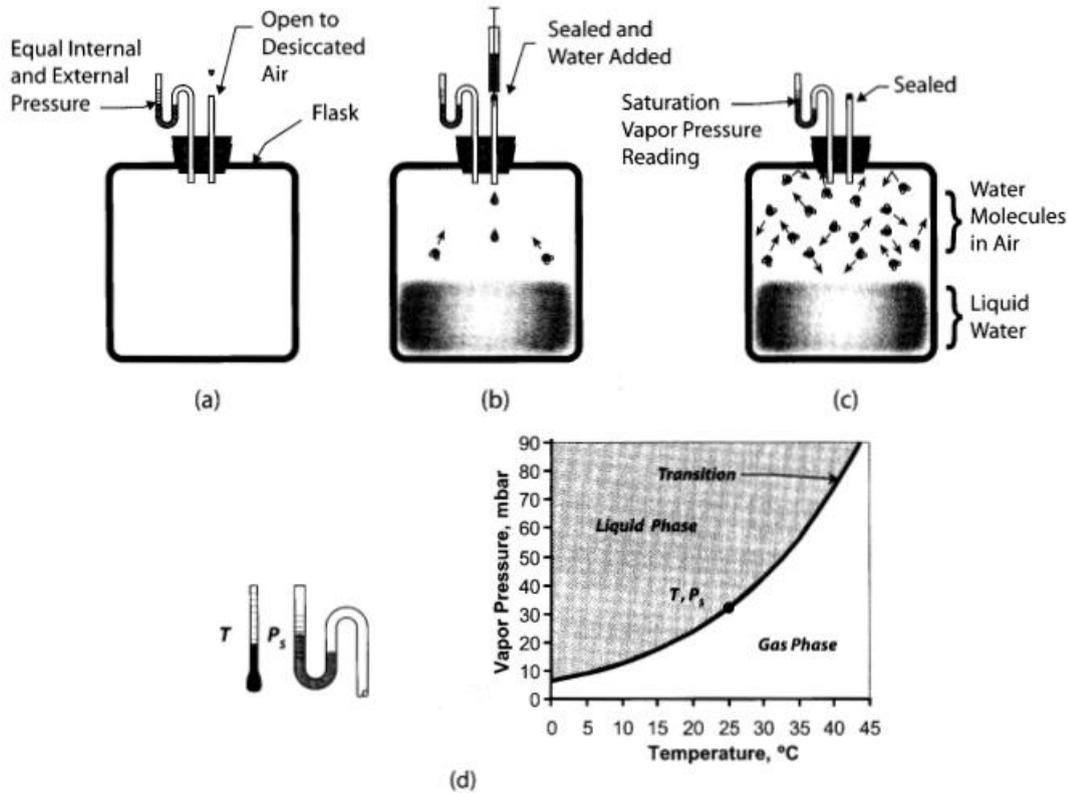


FIGURE I.3 – Schématisation de mesure de la pression saturante de vapeur $p_{v,s}$: (a) un contenant rempli par l'air sec ; (b) de l'eau est injectée dans le contenant étanché et des molécules d'eau échappent de la surface d'eau liquide à l'air ; (c) lorsque l'évaporation et la condensation sont équilibrées, la pression vapeur de l'air est la pression saturante de vapeur ; (d) la relation entre la pression saturante et la température. [*Grasley et al. (2006)*]

c) Humidité relative au-dessus de ménisque

Si on remplace le contenant dans la figure I.3 par un tube fin, l'interface entre l'air et l'eau liquide deviendra un ménisque, voir Figure I.4. Ce ménisque donne une force supplémentaire qui empêche l'évasion des molécules de la surface de l'eau, voir Figure I.5. Ainsi la pression de vapeur $p_{v,m}$ au-dessus du ménisque est moindre que la pression saturante $p_{v,s}$ à l'état de l'équilibre dynamique.

La pression de vapeur au-dessus du ménisque $p_{v,m}$ est une fonction croissante du rayon de tube (ou une fonction décroissante de la courbure de ménisque) [*Grasley et al. (2006)*]. L'humidité relative au-dessus du ménisque HR_m est donnée par

$$HR_m = \frac{p_{v,m}}{p_{v,s}} \quad (I.8)$$

Si on met ce tube (ouvert en haut) dans l'air ambiant dont l'humidité relative HR_{air}

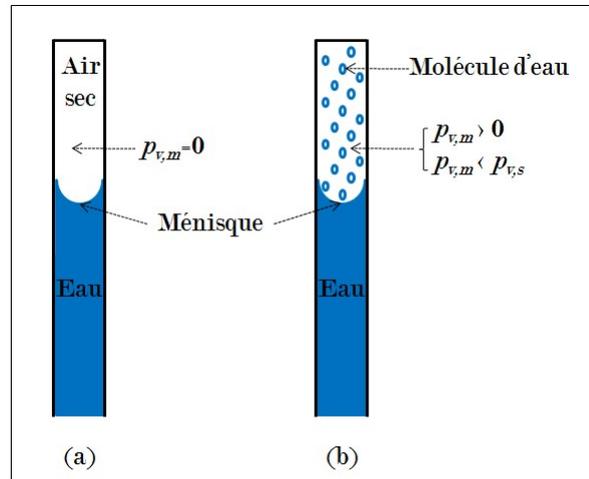


FIGURE I.4 – Pression de vapeur au-dessus de ménisque : (a) air sec au-dessus du ménisque concave ; (b) à l'état de l'équilibre dynamique, la pression de vapeur $p_{v,m}$ est moins que la pression saturante $p_{v,s}$

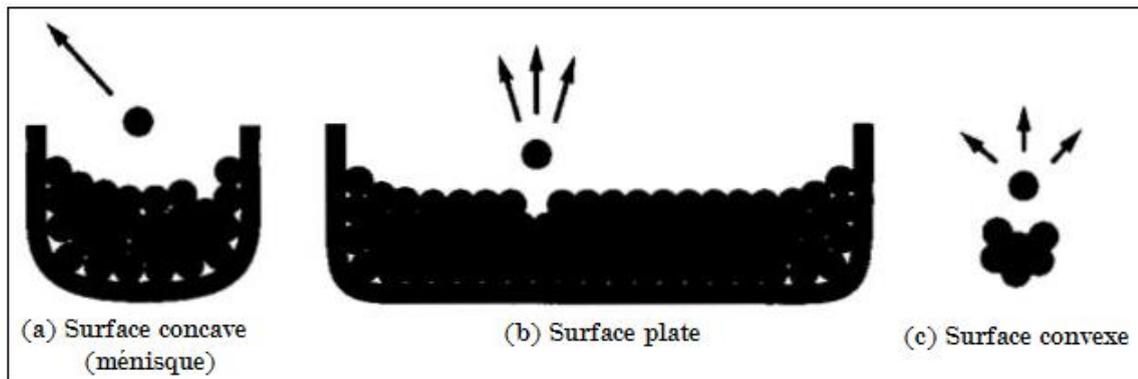


FIGURE I.5 – L'énergie nécessaire et les directions potentielles pour l'évasion des molécules de surface d'un liquide sont des fonctions de la forme de ménisque. Pour le ménisque concave (a), il faut plus d'énergie et moins de direction possible d'évasion que pour les deux autres cas [*Grasley et al.* (2006)]

est supérieure à l'humidité relative au-dessus du ménisque HR_m , la diffusion de molécules d'eau va augmenter la pression de vapeur au-dessus de ménisque. Cela va détruire l'équilibre dynamique entre l'évaporation et la condensation et plus de molécules d'eau vont se condenser dans l'eau liquide. La condensation va enfin remplir ce tube. Ce phénomène s'appelle la condensation capillaire. Par contre, si $HR_{air} < HR_m$, plus de molécules d'eau vont échapper de l'eau liquide et l'évaporation va enfin vider ce tube.

d) Sorption d'un milieu poreux avec tubes parallèles sous une humidité relative fixe

On suppose généralement que les pores dans un milieu poreux sont formés de tubes cylindriques parallèles avec différents rayons (c'est un schéma très simplifié). Si on met ce milieu poreux sous une humidité relative $HR_{air}=XX\%$, des pores dont le rayon est supérieur à r_{XX} (r_{XX} est le rayon du tube relatif à une humidité relative au-dessus de ménisque $HR_m=XX\%$) vont être vidés par l'évaporation et les autres pores dont le rayon est inférieur à r_{XX} vont être remplis par l'eau à cause de la condensation, voir Figure I.6. Les tubes vides (en d'autres termes, remplis par l'air) permettent le passage du gaz lorsqu'on applique un gradient de pression de gaz. Ainsi ces tubes vides donnent la perméabilité effective au gaz. D'autre part, les tubes remplis par l'eau donnent la perméabilité effective à l'eau.

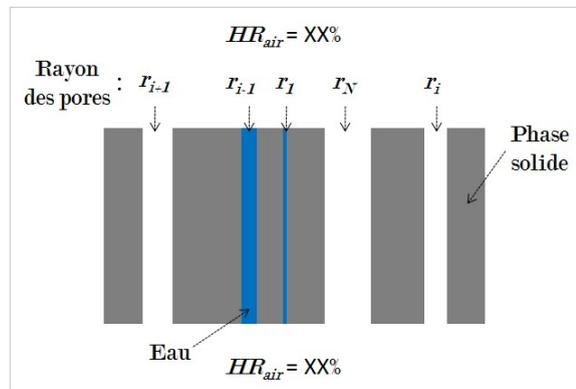


FIGURE I.6 – Milieu poreux avec tubes parallèles sous une humidité relative ambiante fixe

Pour le milieu poreux initialement sec, les pores plus petits vont être remplis plus tôt et les pores plus grands vont être remplis plus tard lorsque l'humidité relative de l'air ambiant augmente.

Pour le milieu poreux initialement saturé, les pores plus grands vont être vidés plus tôt et les pores plus petits vont être vidés plus tard lorsque l'humidité relative de l'air ambiant diminue.

e) Sorption d'un milieu poreux avec tubes croisés sous une humidité relative fixe

Si on met un modèle qui contient des tubes cylindriques croisés sous une humidité relative $HR_{air}=XX\%$, les pores dont le rayon est supérieur au r_{XX} seront vidés et les autres pores seront remplis par l'eau, voir Figure I.7.

Les passages du gaz deviendront plus compliqués que ceux dans un milieu avec tubes parallèles. Il est même possible que le gaz doive atteindre une certaine pression pour

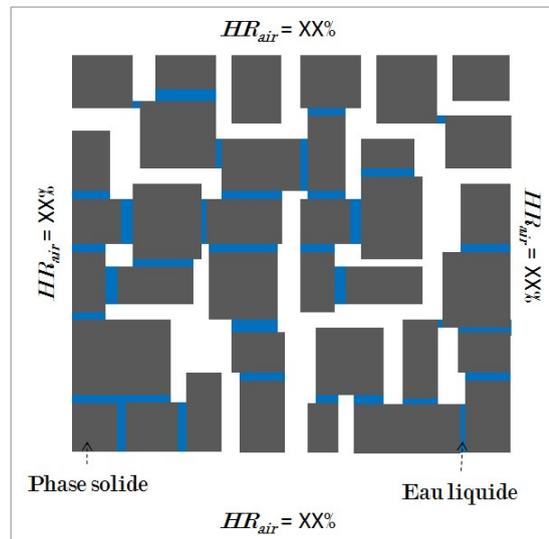


FIGURE I.7 – Milieux poreux avec des tubes croisés sous humidité relative

pénétrer le milieu (pression d'entrée de gaz) car certains passages sont probablement bouchés par l'eau liquide lorsque l'humidité relative est importante (l'humidité relative plus haute remplit plus de pores). Les passages d'eau deviendront aussi beaucoup plus complexes. Il est aussi possible que les pores remplis par l'eau ne se connectent pas, voir Figure I.7. Ceci compliquera la mesure de la perméabilité effective à l'eau.

f) Sorption de matériaux cimentaires sous différentes humidités relatives

Avec la condensation capillaire, des chercheurs [*Goual et al. (2006)*, *Tranle (2010)* et *Collet et al. (2011)*] pensent que l'adsorption de molécules d'eau sur la paroi de pore joue un grand rôle dans la sorption de matériaux poreux lorsque l'humidité relative n'est pas très importante (moins que 0,4). Lorsque l'humidité relative de l'air ambiant augmente de 0 à 1, l'adsorption d'eau peut être divisée en 3 étapes : étape d'adsorption monomoléculaire, étape d'adsorption multimoléculaire et étape de condensation capillaire, voir Figure I.8.

(1) Etape d'adsorption monomoléculaire

Les molécules d'eau de vapeur sont fermement adsorbées sur la paroi des pores sous effet des forces de Van der Waals. Ce phénomène apparaît sous basse humidité relative (moins que 10%).

(2) Etape d'adsorption multimoléculaire

Lorsque l'humidité relative est plus importante ($0,1 < HR < 0,4$), la deuxième couche de molécules d'eau s'adsorbe sur la première couche. Ensuite, la troisième couche s'adsorbe sur la deuxième couche, etc. Multicouches de molécules se forment sur la paroi de pores. On estime 6 couches au maximum [*Mehta et Monteiro (2006)*].

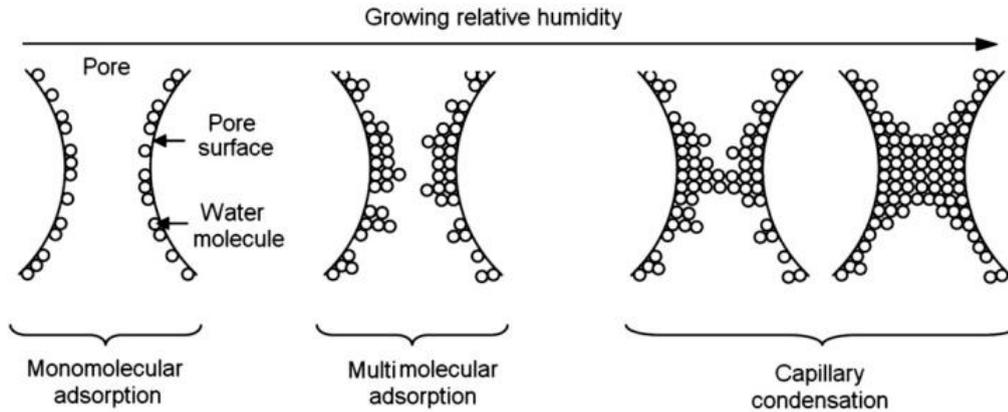


FIGURE I.8 – Schématisation du processus d'adsorption lorsque l'humidité relative ambiante augmente [Collet *et al.* (2011)]

(3) Etape de condensation capillaire

Lorsque l'humidité relative est très importante (plus que 0,4), les multicouches se joignent et forment un pont liquide. Le ménisque sur l'interface entre l'eau liquide et l'air donne la condensation capillaire à cause de la différence entre l'humidité relative au-dessus du ménisque et l'humidité relative de l'air ambiant.

Le processus de désorption est l'inverse de l'adsorption, voir Figure I.9.

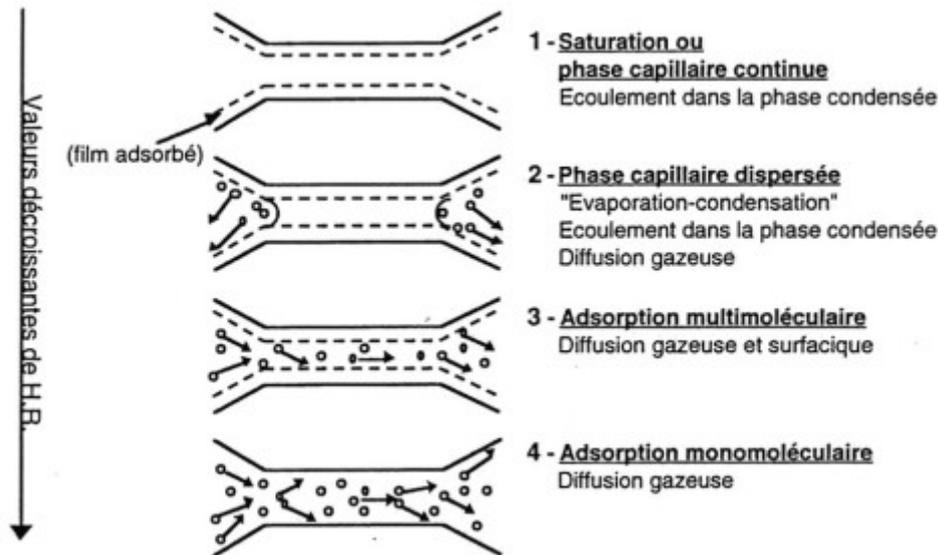


FIGURE I.9 – Schématisation du processus de désorption lorsque l'humidité relative ambiante diminue [BAROGEL-BOUNY (1994), citée par Billard (2003)]

La courbe de la teneur d'eau du milieu poreux (ou la courbe de la saturation en eau) en fonction de l'humidité relative ambiante est appelée l'isotherme de sorption. Selon ce

qu'on indique plus haut, l'isotherme de sorption dépend de la distribution de pores du milieu poreux, voir Figure I.10.

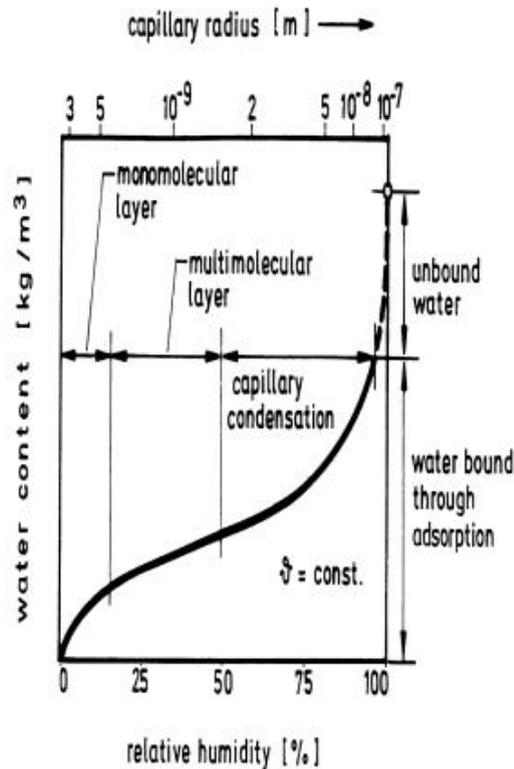


FIGURE I.10 – Sorption sous humidité relative v.s. rayon du pore [*Krus (1996)*]

g) Discussions

Comme indiqué plus haut, l'isotherme d'adsorption et l'isotherme de désorption doivent être identiques. Mais de fait il y a une forte hystérésis de l'isotherme de sorption pour les matériaux cimentaires [*Crausse et al. (1996)*, *Veronique et Baroghel-Bouny (2007)*, *Zouloaga et al. (2009)*], voir Figure I.11, car la distribution et la structure de la porosité dans les matériaux cimentaires sont beaucoup plus compliquées que la structure en tubes parallèles ou en tubes croisés, Figure I.12. Les pores dans le béton sont généralement divisés en trois types - pores entre la matrice cimentaire et l'agrégat, pores capillaires et pores des gels cimentaires [*Chaude et al. (1999)*]. L'eau se distribue dans ces pores par différentes formes : l'eau chimiquement combinée, l'eau interfeuille, l'eau adsorbée, l'eau capillaire [*Mehta et Monteiro (2006)*]. L'effet de "inkbottle" et la variation structurale due à la perte d'eau interfeuille sont généralement considérés comme la cause de l'hystérésis de sorption pour les matériaux cimentaires [*Feldman et Sereda (1970)*, *Feldman (1986)*, *Dario (1984)*],

Espinosa et Franke (2006), Ranaivomanana et al. (2011), Ishida et al. (2007)], voir Figure I.13.

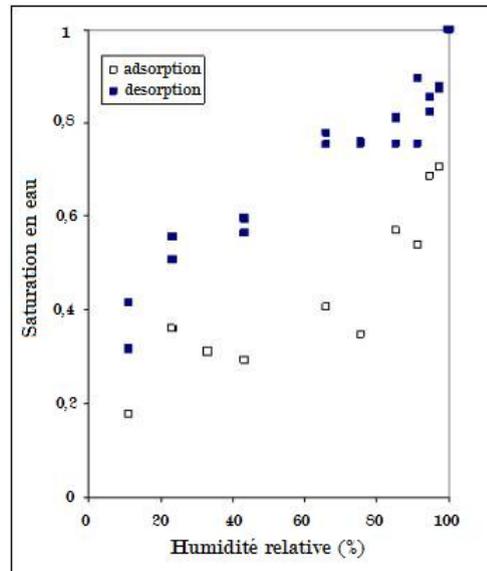


FIGURE I.11 – Isotherme de sorption d'un béton [*Zouloaga et al. (2009)*]

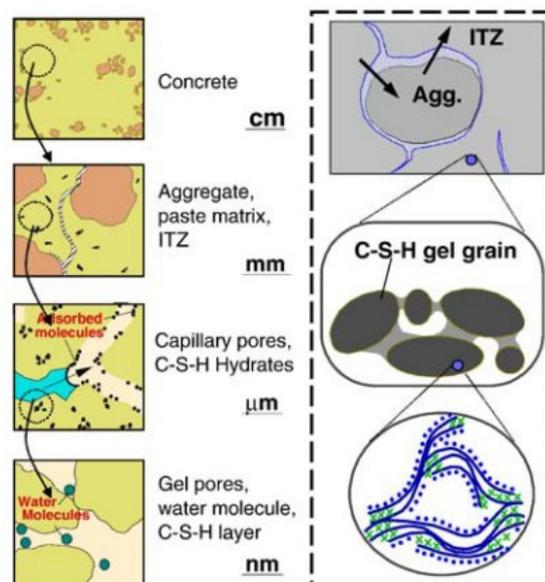


FIGURE I.12 – Différents types de pores dans le béton [*Ishida et al. (2007)*]

Par ailleurs, *Goual et al. (2006)* pensent que l'adsorption sous haute humidité relative (plus grande que 98,9%) ne peut pas complètement saturer les pores dont le rayon est plus grand que 100 nm. Mais l'imbibition capillaire peut complètement saturer ces grands pores.

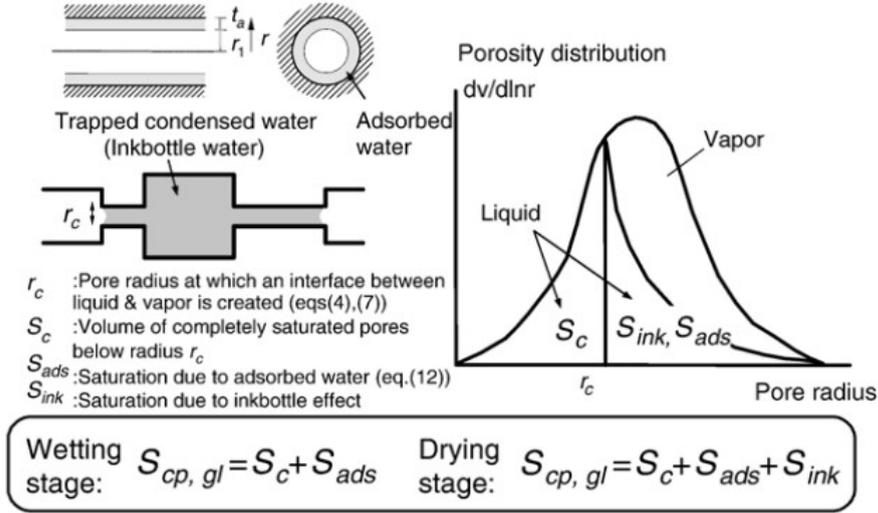


FIGURE I.13 – Effet de "Inkbottle" sur la sorption sous humidité relative [*Ishida et al. (2007)*]

I.2.2 Imbibition capillaire

a) Imbibition capillaire dans un tube

Si on met un tube vertical en contact avec l'eau, un ménisque concave va se former à l'interface entre l'eau et l'air, voir Figure I.14. La tension superficielle de l'interface donne une force verticale sur l'eau liquide due à ce ménisque. Cette force fera monter la surface de l'eau dans le tube jusqu'à l'équilibre avec le poids de la colonne d'eau dans le tube. La loi de Jurin permet de calculer la hauteur finale de cette colonne par

$$h_c = \frac{1}{\rho_w g} \frac{2\gamma \cos\theta}{r} \quad (\text{I.9})$$

où ρ_w est la masse volumique d'eau, g est l'accélération de pesanteur, γ est la tension superficielle de l'interface entre l'eau et l'air, θ est l'angle de contact (l'angle entre l'interface des fluides et la paroi du tube), r est le rayon du tube. La force qui fait monter l'eau est exprimée par une pression équivalente - la pression capillaire p_c [*Pellicer et al. (2000)*]

$$p_c = \frac{2\gamma \cos\theta}{r} \quad (\text{I.10})$$

Par ailleurs, au début de l'imbibition capillaire, si on néglige l'effet de gravité de l'eau, l'écoulement d'imbibition capillaire dans un tube peut être décrit par l'équation de Lucas-

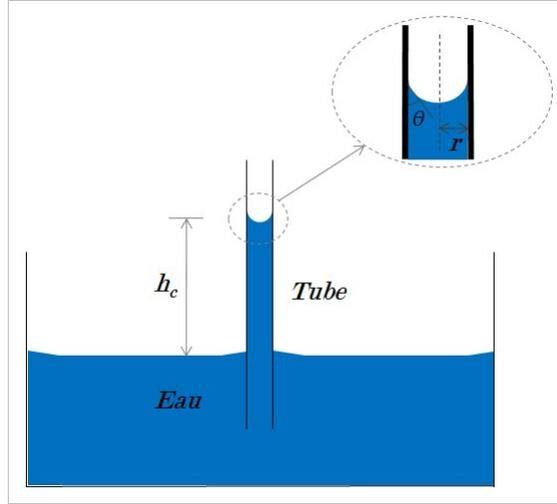


FIGURE I.14 – Imbibition capillaire dans un tube

Washburn [[Hanzic et al. \(2010\)](#)]

$$h_c(t) = \sqrt{\frac{\gamma \cos \theta}{2\mu}} r \sqrt{t} \quad (\text{I.11})$$

On peut conclure que les tubes plus grands sont remplis plus vite au début de l'imbibition capillaire selon l'équation de Lucas-Washburn dans l'imbibition capillaire d'eau.

b) Imbibition capillaire dans un milieu poreux avec tubes parallèles

On suppose que les pores d'un milieu poreux sont composés de tubes parallèles avec différents rayons ($r_{min} = r_1 < r_2 < \dots < r_{i-1} < r_i < r_{i+1} < \dots < r_N = r_{max}$) (figure I.15). Si on met la partie inférieure du milieu en contact avec l'eau, de l'eau va entrer dans les tubes par la capillarité. On peut connaître la hauteur de la colonne d'eau dans chaque tube par l'équation de Lucas-Washburn. Donc si on peut aussi connaître la fraction volumique $F(r_i)$ de la porosité (le volume des tubes dont le rayon est égal à r_i sur le volume total de tous les tubes), on peut calculer le volume d'eau d'entrée dans le milieu par

$$V_{cap}(t) = A\varphi \sqrt{\frac{\gamma \cos \theta}{2\mu}} \left(\sum_{i=1}^N F(r_i) \sqrt{r_i} \right) \sqrt{t} \quad (\text{I.12})$$

où A est la section horizontale du milieu poreux, φ est la porosité, N est le nombre de groupes de pores ayant le même rayon.

La sorption capillaire i est donnée par le ratio de volume d'eau d'entrée $V_{cap}(t)$ sur la

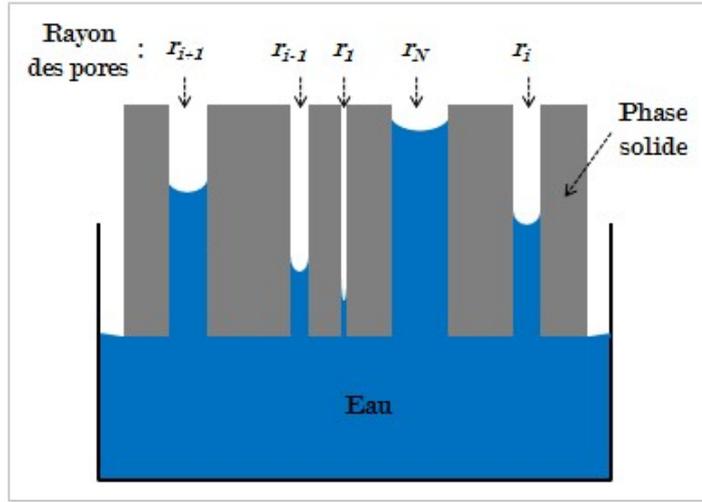


FIGURE I.15 – Imbibition capillaire d'un milieu poreux avec tubes parallèles

Remarque : cette figure présente schématiquement la vitesse d'imbibition capillaire lorsque la gravité de la colonne d'eau dans chaque tube est beaucoup moindre que la pression capillaire. En d'autres termes, cette figure montre l'état transitoire au début de l'imbibition capillaire.

section A [*Martys et Ferraris (1997)*]

$$i = \frac{V_{cap}(t)}{A} = s\sqrt{t} \quad (\text{I.13})$$

où s est le coefficient de sorption capillaire (ou la sorptivité) et il désigne la capacité d'imbibition capillaire d'un milieu poreux. Selon l'équation I.12, la sorptivité s est donnée par

$$s = \varphi \sqrt{\frac{\gamma \cos \theta}{2\mu} r_e} \quad (\text{I.14})$$

$$r_e = \left(\sum_{i=1}^N F(r_i) \sqrt{r_i} \right)^2 \quad (\text{I.15})$$

où r_e est appelé le rayon effectif. On peut trouver que la sorptivité s est influencée par la porosité et la distribution de pores.

La fraction volumique $F(r_i)$ vient de la distribution de taille de pores du matériau poreux. Il existe quatre types principaux de méthodes pour évaluer la distribution de taille de pores [*Feldman (1986)*] : (1) test d'intrusion de mercure (MIP), (2) test de l'adsorption-désorption du gaz, (3) technologie de microscopie électronique de balayage (SEM) [*Hu et Stroeven (2003), Abell et al. (1999)*], (4) test de l'intrusion de métal (une méthode similaire

au MIP). Le test d'intrusion de mercure est souvent utilisé pour les matériaux cimentaires [*Kumar et Bhattacharjee (2004)*, *Pradhan et al. (2005)*, *Abell et al. (1999)*]. Cette méthode est une application directe de l'équation I.10. On injecte du mercure dans le matériau avec une pression p_i et les pores dont le rayon est plus grand que $r_i = 2\gamma\cos\theta/p_i$ seront remplis par le mercure. Si on augmente la pression d'injection p_i , le rayon r_i va diminuer et des pores plus petits seront remplis. Enfin on peut obtenir une relation entre le rayon et le volume cumulé de mercure et ce volume représente le volume cumulé des pores, voir Figure I.16.

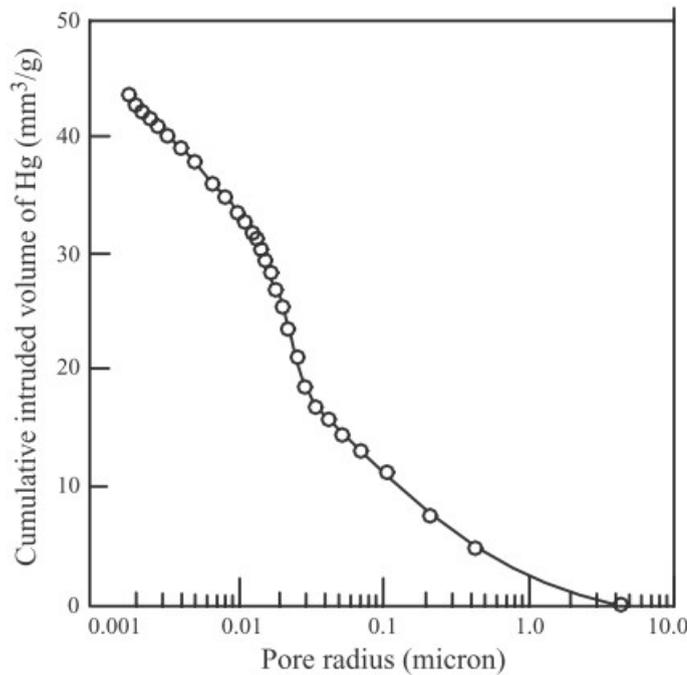


FIGURE I.16 – Résultat d'un test d'intrusion de mercure d'un béton [*Kumar et Bhattacharjee (2004)*]

c) Discussions

Avec l'équation I.9 et le modèle de tubes parallèles, on peut schématiser l'isotherme de teneur d'eau pendant le processus de l'imbibition capillaire, voir Figure I.17. Les courbes d'isotherme de teneur d'eau ne sont pas parallèles, car l'ascension d'eau dans les pores plus grands est plus rapide que celle dans les pores moins grands. Mais *V. Picandet (2008)* montre que les courbes de variation de la teneur d'eau dans un béton sont presque parallèles, voir Figure I.18. Cela montre qu'il existe des failles dans la supposition du modèle géométrique de tubes parallèles.

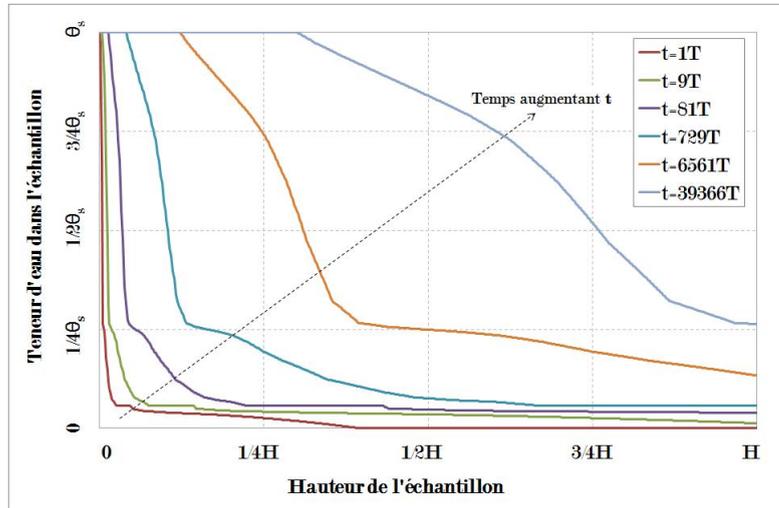


FIGURE I.17 – Schématisation de variation de la teneur d'eau d'un milieu poreux dans le processus d'imbibition capillaire selon le modèle géométrique de tubes parallèles. θ_s est la teneur d'eau maximale, t est le temps, H est la hauteur de l'échantillon

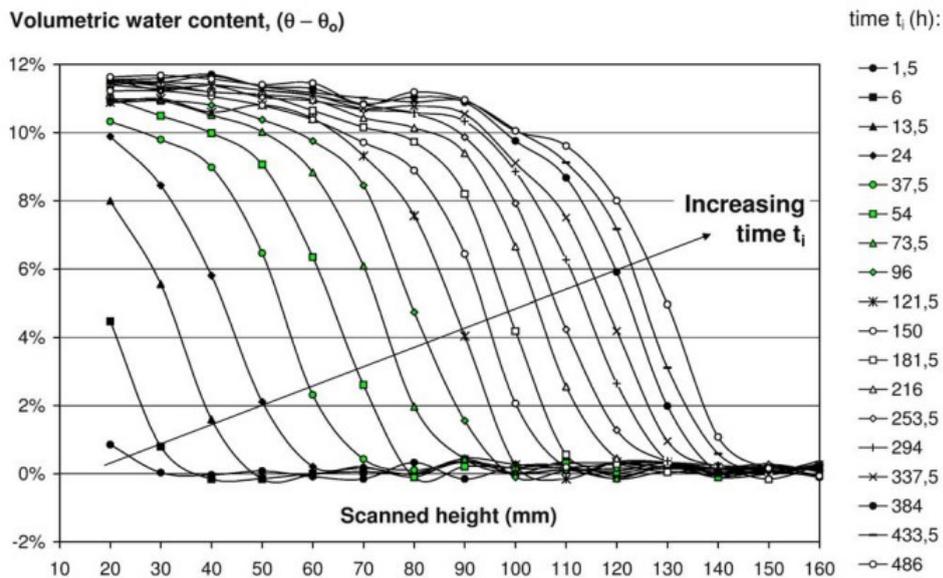


FIGURE I.18 – Variation de la teneur d'eau d'un béton dans le processus d'imbibition capillaire [V. Picandet (2008)]

Si on applique un modèle contient des tubes croisés, l'imbibition capillaire sera comme ce que montre la Figure I.19. L'équation de Lucas-Washburn n'est plus valide pour décrire l'ascension d'eau. Car le rayon du passage d'eau est variable. Donc la validité de l'équation IV.2 est aussi incertaine. Mais ce modèle peut donner l'isotherme d'imbibition capillaire comme ce qu'on montre dans la figure I.18.

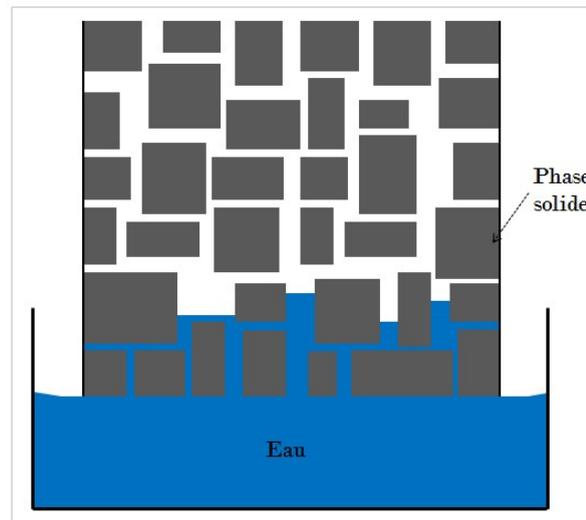


FIGURE I.19 – Imbibition capillaire d'un milieu poreux avec des tubes croisés

Chapitre II

Mesure expérimentale de la perméabilité relative au gaz

Introduction

Ce chapitre présente la mesure de la perméabilité relative au gaz de deux matériaux cimentaires : un mortier de référence et un béton qui est utilisé dans un ouvrage de stockage de déchets radioactifs à Soulaines en France.

La première partie de ce chapitre donne une description des matériaux étudiés.

La deuxième partie détaille deux méthodes de mesure de la perméabilité au gaz dans notre laboratoire : « Régime Permanent » et « Pulse Test ».

Le plan de mesure de la perméabilité relative au gaz est donné dans la troisième partie.

Les résultats de la campagne expérimentale sont enfin exposés : la porosité, la perméabilité effective au gaz, la perméabilité saturée au gaz, et la perméabilité relative au gaz.

II.1 Matériaux et échantillons

Deux matériaux cimentaires sont testés : un mortier et un béton. Le mortier est utilisé pour vérifier la technique in-situ afin d'estimer la saturation en eau. Le béton est utilisé pour fabriquer les barrières dans le centre de stockage de déchets faiblement et moyennement radioactifs de l'Aube (Figure 1). Les deux matériaux sont respectivement notés « mortier de référence » et « béton de Soulaïnes ». Leurs formulations sont présentées dans le tableau II.1 .

TABLE II.1 – Formulations des matériaux [*Andra* (2008)]

Composants	Mortier de référence		Béton de Soulaïnes	
	Nature	Quantité ($\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$)	Nature	Quantité ($\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$)
Ciment	CEM II/B 52.5N	480	CEM V/A 32.5N	400
Sable	Silico-Calcaire (0-4mm)	858	Silico-Calcaire (0-4mm)	820
Gravillons	–	–	Silico-Calcaire (4-8mm)	900
Superplastifiant	–	–	Glénium 27	7,6
Eau	–	384	–	160*
Rapport E/C	0,80		0,40	

*L'eau efficace = l'eau actuelle + l'eau dans le Glénium

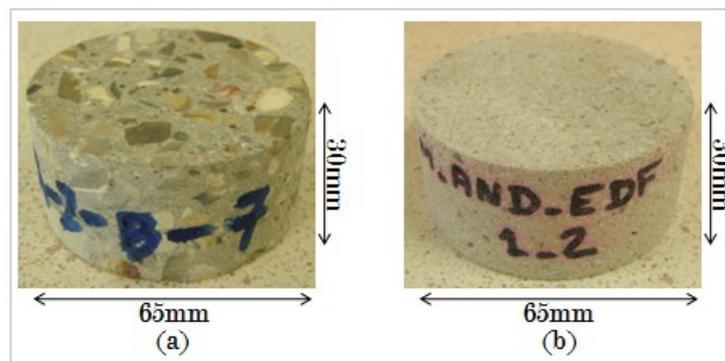


FIGURE II.1 – Echantillons : (a) Béton de Soulaïnes; (b) Mortier de référence

Le mortier a été coulé en cylindres de 16cm de diamètre et de 32cm de hauteur. Après une semaine, les éprouvettes ont été mises sous l'eau pendant un mois. Les échantillons de

65mm de diamètre et de 30mm de hauteur ont ensuite été carottés à partir des éprouvettes de 16×32cm, voir Figure II.1. Le béton de Soulaines a été coulé sur site en cylindres de 16cm de diamètre et de 32cm de hauteur. Les éprouvettes ont été conservées sous la condition in-situ dans le centre à Soulaines (voir Figure 1) pendant 3 mois. Les échantillons de 65mm de diamètre et de 30mm de hauteur ont ensuite été carottés, voir Figure II.1.

II.2 Méthodes de mesure de la perméabilité effective au gaz

Dans notre laboratoire, nous avons deux méthodes de mesure de la perméabilité effective au gaz : « Régime Permanent » et « Pulse Test ».

II.2.1 « Régime Permanent »

Cette méthode mesure la perméabilité au gaz en réalisant un écoulement quasi stationnaire.

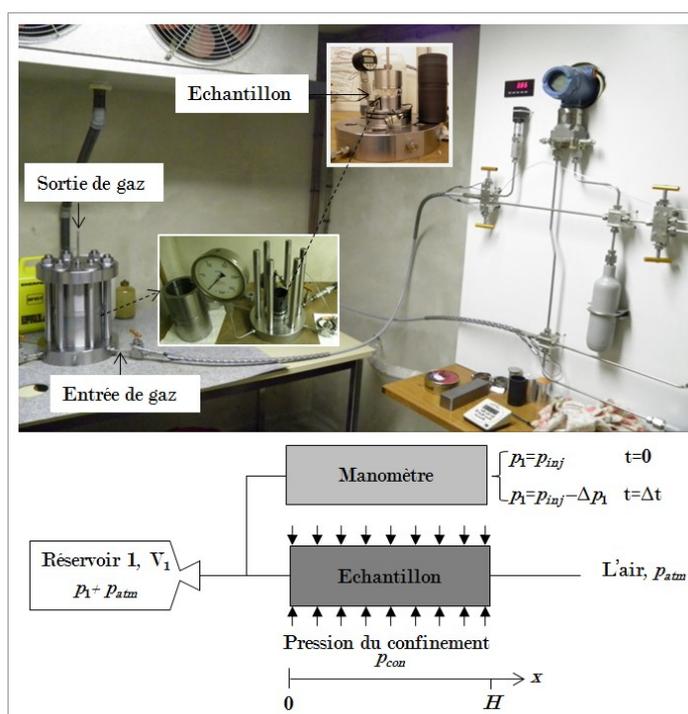


FIGURE II.2 – Système expérimental utilisé pour le « Régime Permanent »

Un échantillon est initialement placé dans une cellule en pression du confinement de 5MPa fournie par une pompe manuelle ENERPAC, voir Figure II.2. Une pression d'injection de gaz p_{inj} fournie par un réservoir tampon R_1 est appliquée sur un côté de

l'échantillon. L'autre côté de l'échantillon est mis dans une condition de drainage libre à la pression atmosphérique p_{atm} . Le gaz (c'est l'argon dans notre laboratoire) s'écoule par l'échantillon à cause du gradient de pression. Après une période Δt , l'écoulement du gaz entraîne une chute de pression Δp_1 dans le réservoir R_1 . Cette chute de pression Δp_1 est beaucoup moindre que la pression d'injection p_{inj} ($\Delta p_1/p_{inj} \leq 0,56\%$ dans les essais de cette étude). Donc, on peut admettre que tout se passe comme si pendant Δt on avait un écoulement stationnaire. Selon la loi de Darcy (équation I.2), l'écoulement est exprimé par

$$\frac{Q_{moy}}{A} = -\frac{k_g}{\mu_g} \frac{\partial p_{int}}{\partial x} \quad (\text{II.1})$$

où A est la section de l'échantillon, k_g est la perméabilité au gaz, μ_g est la viscosité de gaz, Q_{moy} est le débit de gaz qui est obtenu par la loi de conservation de la masse (la masse de gaz sortie du réservoir R_1 est égale à la masse de gaz traversant l'échantillon)

$$Q_{moy} = \frac{V_1 \Delta p_1}{p_{moy} \Delta t} \quad (\text{II.2})$$

où V_1 est le volume du réservoir R_1 , $p_{moy} = p_{inj} - \Delta p_1/2$ est la pression moyenne. p_{int} dans l'équation II.1 est la pression intérieure dans l'échantillon et on suppose qu'elle est une fonction de la coordonnée x et du temps t [*Dana et Skoczylas (1999)*]

$$p_{int}(x, t) = \sqrt{p(0, t)^2 \left(1 - \frac{x}{H}\right) + p(H, t)^2 \left(\frac{x}{H}\right)} \quad (\text{II.3})$$

où H est la hauteur de l'échantillon, $p(0, t) = p_{moy}$ et $p(H, t) = p_{atm}$. Avec les équations (II.1), (II.2) et (II.3), on peut obtenir la perméabilité au gaz par

$$k_g = \frac{\mu_g Q_{moy}}{A} \frac{2H p_{moy}}{p_{moy}^2 - p_{atm}^2} \quad (\text{II.4})$$

II.2.2 « Pulse Test »

Comme son nom l'indique, cette méthode utilise un pulse de pression pour mesurer la perméabilité.

On applique initialement une pression de gaz p_{ini} aux deux extrémités de l'échantillon par deux réservoirs R_1 et R_2 , voir Figure II.3. Une surpression Δp_{ini} est ensuite appliquée dans le réservoir R_1 et un écart de pression se forme entre deux extrémités de l'échantillon. Le gaz s'écoule donc du réservoir R_1 au réservoir R_2 via l'échantillon à cause du gradient de pression. L'écart de pression $\Delta p_{1,2}$ entre les deux extrémités de l'échantillon est donné

par [Dana et Skoczylas (1999)]

$$\Delta p_{1,2}(t) = \Delta p_{ini} \exp\left(-\frac{k_g A}{\mu_g H} \left(\frac{1}{V_1} + \frac{1}{V_2}\right) \left(p_{ini} + \frac{\Delta p_{ini} V_1}{V_1 + V_2}\right) t\right) \quad (\text{II.5})$$

où V_1 et V_2 sont respectivement les volumes du réservoir R_1 et du réservoir R_2 , t est le temps.

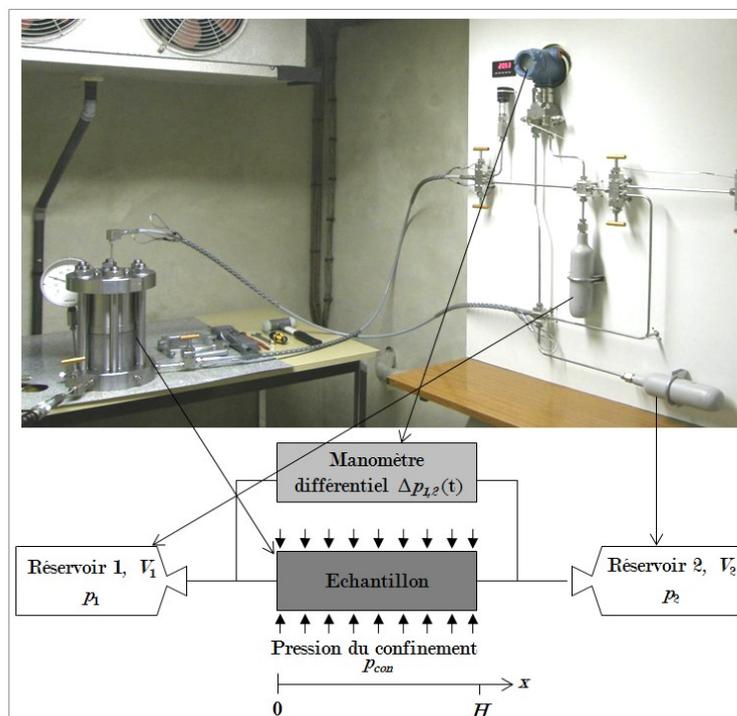


FIGURE II.3 – Système expérimental utilisé pour le « Pulse Test »

L'écart de pression $\Delta p_{1,2}$ est mesuré par le manomètre différentiel et la perméabilité au gaz k_g peut donc être déterminée par l'équation II.5.

L'expression II.5 est une simplification qui suppose qu'à chaque instant l'écoulement est en régime permanent. Ceci est d'autant plus vrai que l'espace poreux est petit devant le volume des réservoirs R_1 et R_2 [Dana et Skoczylas (1999)]. Dans les essais de ce mémoire, l'espace poreux de l'échantillon est entre 8cm^3 et 20cm^3 tandis que le volume du réservoir est 420cm^3 .

II.2.3 Discussions

La méthode « Régime Permanent », qui est plus simple que la méthode « Pulse Test », est bien adaptée pour tester les matériaux qui ont une perméabilité au gaz plus grande

que 10^{-18} m² alors que la méthode « Pulse Test » est utilisée pour tester les matériaux qui sont plus imperméables.

La perméabilité effective au gaz du mortier de référence est mesurée par la méthode « Régime Permanent » avec une pression du confinement $p_{con}=5,0$ MPa, une pression d'injection $p_{inj}=1,9$ MPa et une chute de pression $\Delta p_1=0,01$ MPa. Quant au béton de Soulaines qui est plus imperméable, on utilise la méthode « Pulse Test » avec une pression du confinement $p_{con}=5,0$ MPa, une pression initiale $p_{ini}=2,0$ MPa et une surpression $\Delta p_{ini}=0,5$ MPa.

Pour vérifier la cohérence de deux méthodes, des échantillons du béton de Soulaines sont testés respectivement par les deux méthodes, voir Figure II.4. Les valeurs mesurées par les deux méthodes sont comparables et donnent la même tendance de variation de la perméabilité. Par ailleurs, la pression moyenne dans la méthode « Régime Permanent » est moindre que celle dans la méthode « Pulse Test » (1MPa < 2MPa). Donc, selon l'équation de Klinkenberg [*Klinkenberg (1941)*, citée par *Wu et al. (1998)* et *Lion (2004)*], la perméabilité mesurée par « Régime Permanent » sera plus grande que celle mesurée par « Pulse Test ». Les résultats expérimentaux correspondent aussi à cette conclusion, voir Figure II.4.

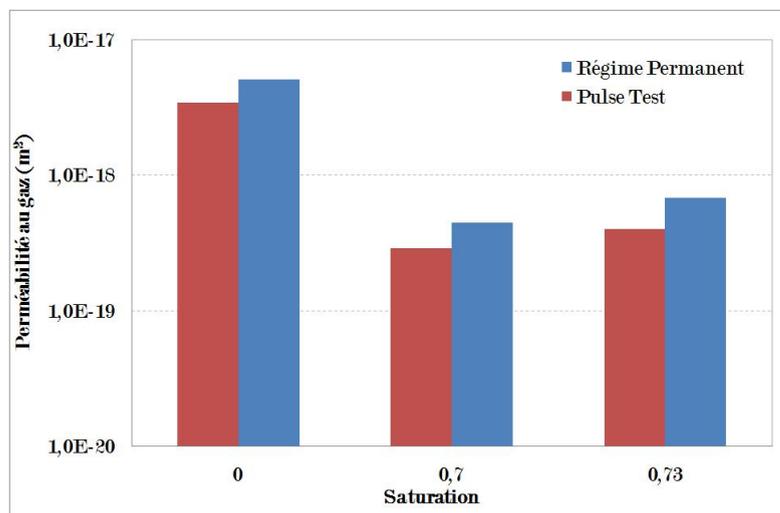


FIGURE II.4 – Comparaison des résultats de « Régime Permanent » et de « Pulse Test » par 3 échantillons du béton de Soulaines

La perméabilité saturée au gaz peut être considérée comme la perméabilité effective au gaz à l'état sec. Donc, on mesure la perméabilité saturée au gaz avec la même méthode que celle pour mesurer la perméabilité effective au gaz.

II.3 Plan de mesure

La mesure se compose de 5 étapes : étape de prétraitement sous différentes humidités relatives, étape de mesure de la perméabilité effective au gaz, étape de séchage à l'étuve de 65 °C, étape de mesure de la perméabilité saturée au gaz et étape de resaturation dans l'eau sous vide.

a) Prétraitement sous différentes humidités relatives

Les échantillons sont d'abord mis sous différentes humidités relatives : 11%, 43%, 59%, 70%, 75%, 85%, 92% et 98%. Ces humidités relatives sont fournies par diverses solutions salines [*Greenspan (1977)*], voir Figure II.5. Les échantillons adsorbent ou perdent de l'eau à cause de la sorption sous humidité relative.



FIGURE II.5 – Échantillons sous différentes humidités relatives

Les échantillons sont régulièrement pesés jusqu'à la stabilisation de la masse. Cette masse stable est notée $m_{e,XX}$ et XX représente la valeur de l'humidité relative sous laquelle cet échantillon est équilibré.

En fait, il est difficile d'obtenir un état de stabilisation absolu de la masse pour les matériaux cimentaires sous humidité relative. *Poyet (2009)* montre un processus de désorption d'un béton, voir Figure II.6. Même après 3 ans et demi, la masse n'est pas complètement stable. Notre prétraitement des matériaux cimentaires ne dure pas si longtemps. Lorsque la différence de masse de l'échantillon entre deux mesures voisines est moins de 0,01g (0,01g est la précision de notre balance et il se rapporte à un changement de masse relative moindre que 0,005%), on suppose que la distribution d'eau dans l'échantillon est définitive. En d'autres termes, on suppose que la variation suivante de masse est faible et que elle n'influence plus la mesure de la perméabilité.

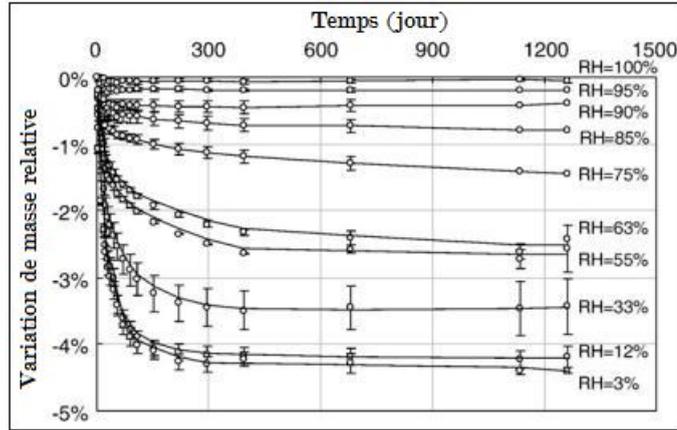


FIGURE II.6 – Variation de masse relative d'un béton sous différentes humidités relatives [Poyet (2009)]

b) Mesure de la perméabilité effective au gaz

Avec les méthodes introduites dans la section II.2, on mesure la perméabilité effective au gaz de l'échantillon dont la masse est stable dans la première étape. Cette perméabilité est notée $k_{g,e,XX}$.

c) Séchage à l'étuve de 65 °C

Les échantillons sont séchés dans une étuve à une température de 65 °C. La masse stable à la fin de séchage est notée $m_{sc,XX}$.

d) Mesure de la perméabilité saturée au gaz

A cette étape, la perméabilité saturée au gaz est mesurée. Cette perméabilité est notée $k_{g,i,XX}$. C'est la perméabilité qui nous suivra de référence.

e) Resaturation dans l'eau sous vide

Lors de cette dernière étape, les échantillons sont resaturés dans l'eau sous vide. On peut obtenir la masse de l'échantillon saturé $m_{st,XX}$.

Avec les résultats des 5 étapes, on peut calculer la porosité φ , la saturation $S_{w,XX}$ et la perméabilité relative au gaz $k_{g,r,XX}$ de chaque échantillon par

$$\varphi = \frac{m_{st,XX} - m_{sc,XX}}{\rho_w V_{ech}} \quad (II.6)$$

$$S_{w,XX} = \frac{m_{e,XX} - m_{sc,XX}}{m_{st,XX} - m_{sc,XX}} \quad (II.7)$$

$$k_{g,r,XX} = \frac{k_{g,e,XX}}{k_{g,i,XX}} \quad (\text{II.8})$$

où ρ_w est la masse volumique d'eau, V_{ech} est le volume de l'échantillon.

II.4 Résultats et discussions

II.4.1 Etat récapitulatif de résultats

Les tableaux II.2 et II.3 présentent les résultats sur la porosité, la saturation en eau, la perméabilité effective au gaz, la perméabilité saturée au gaz et la perméabilité relative au gaz.

II.4.2 Porosité et perméabilité saturée

Le mortier de référence a une porosité très peu dispersée autour d'une valeur moyenne de 0,214 et la perméabilité saturée au gaz de tous échantillons ont un même ordre de grandeur de 10^{-17} m², voir Figure II.7. De ce point de vue, on peut conclure que le mortier de référence est un matériau homogène. Par ailleurs, la perméabilité saturée au gaz est bien corrélée à la porosité, voir Figure II.7.

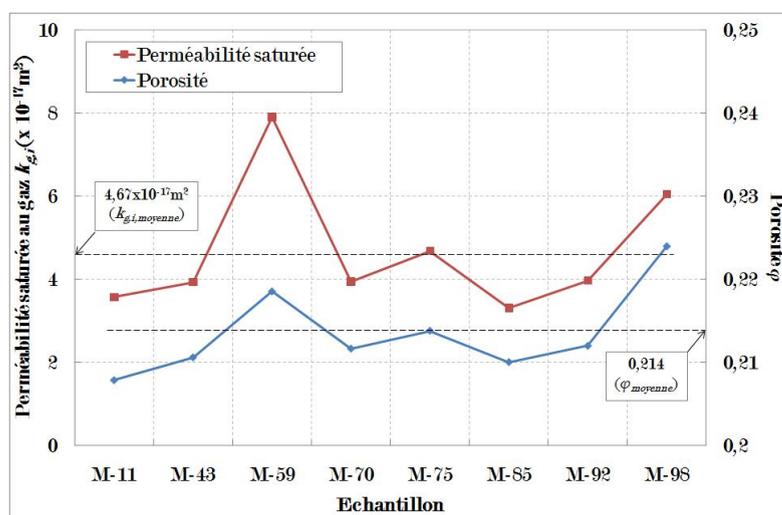


FIGURE II.7 – Porosité et perméabilité saturée au gaz des échantillons du mortier de référence

Le béton de Soulaines a aussi une porosité très peu dispersée autour d'une valeur moyenne de 0,117 et la perméabilité saturée au gaz de tous échantillons ont un même ordre de grandeur de 10^{-18} m², voir Figure II.8. De ce point de vue, on peut conclure que le béton de Soulaines est aussi un matériau homogène. Mais, il n'y a pas de corrélation nette

TABLE II.2 – Résultats du mortier de référence

Echantillon	Humidité relative HR	Porosité φ	Saturation en eau S_w	Perméabilité effective $k_{g,e} (m^2)$	Perméabilité saturée $k_{g,i} (m^2)$	Perméabilité relative $k_{g,r}$
M-11	11%	0,208	0,06	$3,31 \times 10^{-17}$	$3,57 \times 10^{-17}$	0,93
M-43	43%	0,210	0,31	$1,23 \times 10^{-17}$	$3,93 \times 10^{-17}$	0,31
M-59	59%	0,219	0,30	$2,63 \times 10^{-17}$	$7,90 \times 10^{-17}$	0,33
M-70	70%	0,212	0,43	$6,25 \times 10^{-18}$	$3,94 \times 10^{-17}$	0,16
M-75	75%	0,214	0,46	$7,00 \times 10^{-18}$	$4,68 \times 10^{-17}$	0,15
M-85	85%	0,210	0,55	$2,98 \times 10^{-18}$	$3,31 \times 10^{-17}$	0,09
M-92	92%	0,212	0,74	$2,69 \times 10^{-18}$	$3,97 \times 10^{-17}$	0,07
M-98	98%	0,224	0,76	$3,26 \times 10^{-18}$	$6,04 \times 10^{-17}$	0,05

TABLE II.3 – Résultats du béton de Soulaines

Echantillon	Humidité relative HR	Porosité φ	Saturation en eau S_w	Perméabilité effective $k_{g,e} (m^2)$	Perméabilité saturée $k_{g,i} (m^2)$	Perméabilité relative $k_{g,r}$
B-11-1	11%	0,118	0,086	$2,77 \times 10^{-18}$	$3,83 \times 10^{-18}$	0,723
B-11-2	11%	0,122	0,091	$2,83 \times 10^{-18}$	$3,46 \times 10^{-18}$	0,818
B-43-1	43%	0,108	0,334	$2,17 \times 10^{-18}$	$6,67 \times 10^{-18}$	0,325
B-43-2	43%	0,124	0,350	$1,79 \times 10^{-18}$	$4,14 \times 10^{-18}$	0,432
B-59-1	59%	0,110	0,481	$1,58 \times 10^{-18}$	$7,20 \times 10^{-18}$	0,219
B-59-2	59%	0,121	0,494	$1,03 \times 10^{-18}$	$4,08 \times 10^{-18}$	0,252
B-70-1	70%	0,119	0,537	$1,57 \times 10^{-18}$	$5,36 \times 10^{-18}$	0,293
B-70-2	70%	0,128	0,590	$7,94 \times 10^{-19}$	$3,55 \times 10^{-18}$	0,224
B-75-1	75%	0,121	0,652	$4,67 \times 10^{-19}$	$3,11 \times 10^{-18}$	0,150
B-75-2	75%	0,114	0,553	$8,00 \times 10^{-18}$	$7,35 \times 10^{-17}$*	0,109
B-85-1	85%	0,117	0,753	$4,02 \times 10^{-19}$	$4,22 \times 10^{-18}$	0,095
B-85-2	85%	0,116	0,698	$2,90 \times 10^{-19}$	$3,82 \times 10^{-18}$	0,076
B-92-1	92%	0,113	0,714	$4,42 \times 10^{-19}$	$3,70 \times 10^{-18}$	0,120
B-92-2	92%	0,121	0,753	$4,79 \times 10^{-19}$	$3,21 \times 10^{-18}$	0,149
B-98-1	98%	0,110	0,758	$2,23 \times 10^{-19}$	$2,76 \times 10^{-18}$	0,081
B-98-2	98%	0,112	0,739	$2,45 \times 10^{-19}$	$3,46 \times 10^{-18}$	0,071

*La perméabilité saturée au gaz de l'échantillon B-75-2 est 10 fois plus grande que la perméabilité saturée au gaz des autres échantillons et cette valeur atypique peut provenir d'un défaut localisé tel qu'une fissuration ou une décohesion granulats-pâte. Nous nous proposons par la suite d'ignorer le résultat de cet échantillon.

entre la perméabilité saturée au gaz et la porosité, voir Figure II.8. Les pores plus grands contribuent plus à la perméabilité selon la loi de Poiseuille et le mortier est beaucoup plus poreux que le béton. Alors on peut penser que les pores plus grands occupent une partie plus grande de la porosité pour le mortier que pour le béton et que la variation de porosité des échantillons du mortier correspond à la variation des pores plus grands. Ainsi, pour le mortier, on peut trouver une corrélation entre la perméabilité au gaz et la porosité.

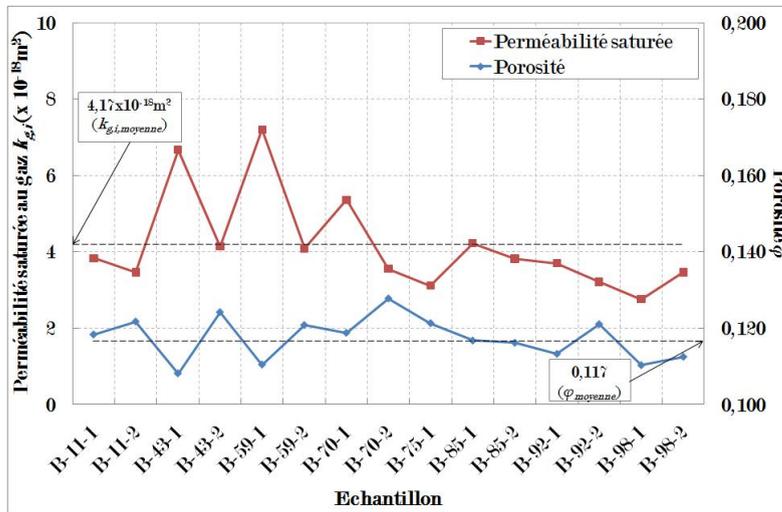


FIGURE II.8 – Porosité et perméabilité saturée au gaz des échantillons du béton de Soulaines

La porosité du mortier de référence est plus grande que celle du béton de Soulaines ($0,214 > 0,117$), voir Figures II.7 et II.8. Le mortier plus poreux est aussi logiquement plus perméable que le béton. La perméabilité saturée au gaz du mortier est 10 fois plus grande que celle du béton, voir Figures II.7 et II.8.

II.4.3 Variation de masse sous humidité relative

La variation de masse des échantillons sous différentes humidités relatives est présentée dans les Figures II.9 et II.10.

Généralement, le mortier de référence est desaturé plus rapidement sous humidité relative plus basse, car l'humidité relative plus basse offre l'écart plus grand entre l'humidité relative ambiante et l'humidité relative intérieure dans le matériau (en effet, le transfert de vapeur qui desature l'échantillon est provoqué par cet écart, voir section I.1), voir Figure II.9. Mais il y a des exceptions. Par exemple, l'échantillon dans le cas de l'humidité relative de 59% (HR59%) a une perméabilité saturée au gaz plus grande que celle dans le cas de HR43%, voir Tableau II.2. La perméabilité au gaz plus grande désigne plus capable de se laisser traverser par le gaz. Donc, la vapeur dans l'échantillon dans le cas de HR59% peut sortir plus rapidement. Alors l'échantillon dans le cas HR59% peut être desaturé plus

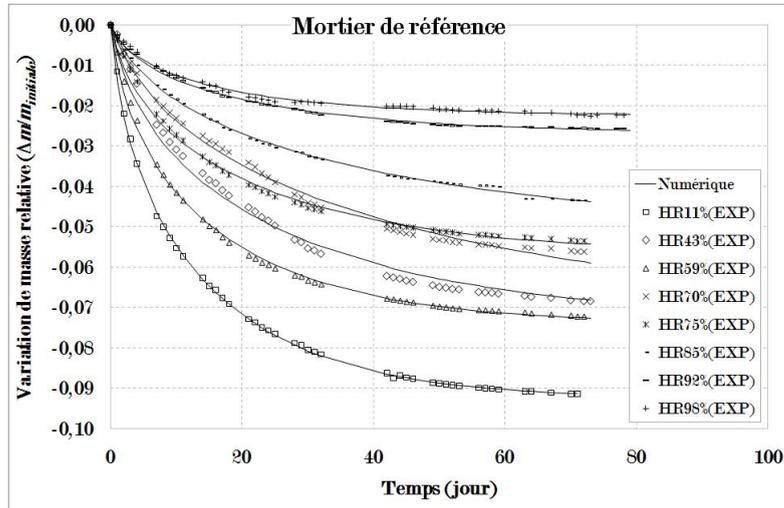


FIGURE II.9 – Variation de masse relative du mortier de référence sous différentes humidités relatives

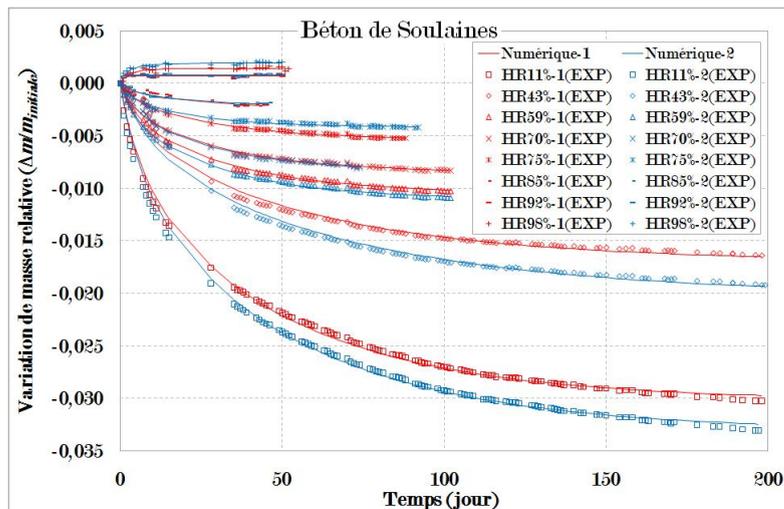


FIGURE II.10 – Variation de masse relative du béton de Soulaines sous différentes humidités relatives

rapidement que celui dans le cas de HR43%, voir Figure II.9. Mais comme la désorption se produit, de plus en plus de pores plus grands, qui contribuent plus à la perméabilité, sont vidés et la désorption a lieu dans les pores plus petits qui ne contribuent pas beaucoup à la perméabilité (les pores se vidant des pores plus grands aux pores plus petits dans le processus de désorption sous humidité relative, voir section I.2.1). Donc, l'effet de la différence de perméabilité s'affaiblit et l'écart d'humidité relative revient prédominant. Par conséquence, la désorption dans le cas de HR43% devient enfin plus rapide. Pour les cas de HR70% and HR75%, on va trouver le même phénomène que pour les cas de HR43%

and HR59%, voir Figure II.9.

Pour le béton de Soulaines, l'échantillon se resature sous humidité relative égale ou supérieure à 92% et se desature sous humidité relative inférieure à 92%. Ceci indique que la saturation initiale du béton de Soulaines n'est pas 100%, car le béton de Soulaines a été conservé sous la condition in-situ (exposé dans l'air).

La sorption sous humidité relative d'un échantillon sphérique peut être modélisée par une série de fonctions exponentielles [*Crank* (1975)]

$$m_e(t) = m_f \left(1 - \frac{6}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} \exp \left(-\frac{D\pi^2}{R_s^2} n^2 t \right) \right) \quad (\text{II.9})$$

ou m_e est la masse d'eau traversant la surface de l'échantillon pendant une période t , m_f est la masse finale d'eau traversant la surface de l'échantillon au temps infini, D est le coefficient de diffusion, R_s est le rayon de la sphere.

Tata et Watanabe (2003) récrit l'équation au-dessus par

$$m_e(t) = m_f \left(1 - b \sum_{n=1}^N \frac{1}{n^2} \exp(-cn^2t) \right) \quad (\text{II.10})$$

ou b est l'inverse de la somme $\sum_{n=1}^N 1/n^2$, c est égal à $D\pi^2/R_s^2$ et D est le coefficient de diffusion.

Tata et Watanabe (2003) montrent que l'équation II.10 ($N=5$ est déjà suffisant) peut simuler le processus de sorption des matériaux cimentaires même si l'échantillon n'est pas précisément sphérique. Donc, nous essayons de simuler les résultats expérimentaux de sorption avec l'équation II.10. La simulation peut modéliser les résultats expérimentaux, voir Figures II.9 et II.10. Les valeurs des paramètres m_f et c utilisées dans la simulation sont présentées dans les tableaux II.4 et II.5.

On suppose que le rayon équivalent R des échantillons est constant, car les tailles des échantillons dans notre essais sont invariables. Le paramètre c est égal à $D\pi^2/R^2$ dans l'équation II.10. Alors on peut penser que le paramètre c est proportionnel au coefficient de diffusion D et la variation de valeur du paramètre c reflète directement la variation du coefficient de diffusion D . Donc, pour le mortier de référence, le c varie peu autour de 0,041 et ceci indique que l'écart d'humidité relative n'influence pas beaucoup sur le coefficient de diffusion, voir Tableau II.4. Mais si on regarde ensemble la perméabilité saturée au gaz et le paramètre c des échantillons du mortier de référence, on peut trouver que les deux ont généralement une même tendance de variation sauf l'échantillon dans le cas HR11% où l'écart d'humidité relative est le plus grand, voir Figure II.11. Ceci indique que la dispersion de la perméabilité saturée au gaz des échantillons de mortier influence la vitesse de désorption. Pour le béton de Soulaines, le paramètre c augmente généralement lorsque l'humidité relative augmente dans le processus de désorption (dans les cas de

TABLE II.4 – Valeurs des paramètres m_f et c du mortier de référence

Humidité relative (HR)	11%	43%	59%	70%	75%	85%	92%	98%
m_f (g)	19,96	15,78	15,64	15,59	12,22	11,06	5,8	4,64
c (heure ⁻¹ *)	0,056	0,032	0,050	0,018	0,038	0,022	0,040	0,050
Coefficient de détermination**	1,000	0,996	0,998	0,993	0,997	0,998	0,998	0,992

*Le paramètre c est proportionnel au coefficient de diffusion D : $c = D\pi^2/R^2$

**Ce coefficient mesure l'adéquation entre les résultats numériques et les résultats expérimentaux et ce coefficient plus proche de 1 indique que le degré d'association entre les résultats numériques et les résultats expérimentaux est plus haut.

TABLE II.5 – Valeurs des paramètres m_f et c du béton de Soulaines

Humidité relative (HR)		11%	43%	59%	70%	75%	85%	92%	98%
m_f (g)	Echantillon-X1	6,89	3,78	2,48	1,93	1,24	0,55	-0,16	-0,33
	Echantillon-X2	7,71	4,56	2,62	1,99		0,50	-0,18	-0,42
c (heure ⁻¹)	Echantillon-X1	0,019	0,016	0,028	0,029	0,029	0,037	1,06	0,23
	Echantillon-X2	0,018	0,014	0,031	0,030		0,045	1,69	0,24
Coefficient de détermination	Echantillon-X1	0,998	0,985	0,998	0,997	0,996	0,864	0,605	0,849
	Echantillon-X2	0,998	0,985	0,998	0,995		0,975	0,712	0,917

HR11% à HR85%) et donc on peut dire que le coefficient de diffusion augmente lorsque l'écart d'humidité relative diminue, voir Tableau II.5. La diminution de l'écart d'humidité relative indique l'augmentation d'humidité relative intérieure moyenne du béton dans le processus de désorption. Donc ceci indique que le coefficient de diffusion augmente lorsque l'humidité relative intérieure augmente. *Pavlik et al. (2011)* a présenté la même tendance du coefficient de diffusion d'un béton cellulaire, voir Figure II.12.

Le coefficient de diffusion D dans le processus d'adsorption (les cas de HR92% et HR98%) est beaucoup plus grand que celui de désorption, voir Tableau II.5. Mais pour le cas de HR92%, le coefficient de détermination est le plus petit, voir Tableau II.5. Ceci doit être dû à la précision de la pesée. La variation de masse dans le cas de HR92% est la plus petite et l'échantillon arrive presque à la teneur stable en une journée de sorption. Mais l'intervalle de pesée est une journée et notre pesée ne peut pas noter les détails de sorption. Donc, la simulation basée sur les données de pesée pour le cas de HR92% est

II. Mesure expérimentale de la perméabilité relative au gaz

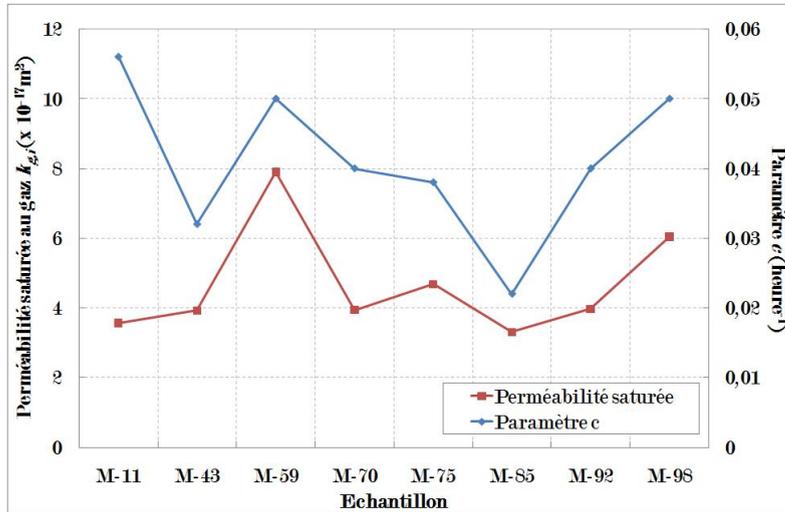


FIGURE II.11 – Perméabilité intrinsèque au gaz et paramètre c du mortier de référence incertaine.

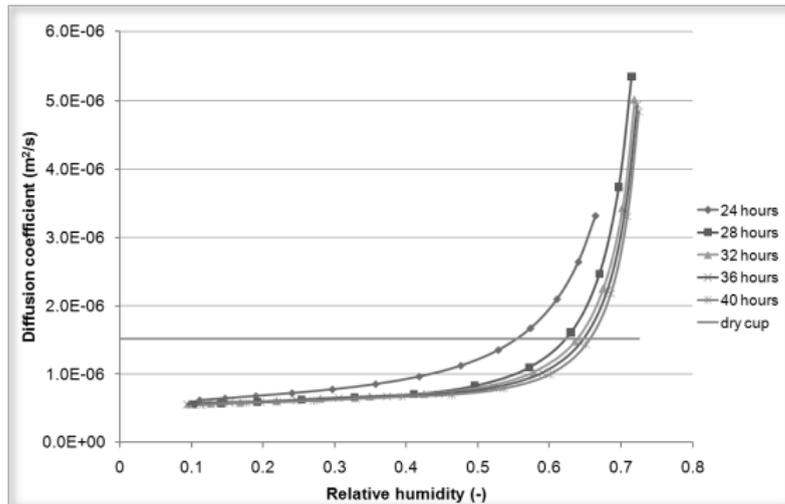


FIGURE II.12 – Coefficient de diffusion en fonction de l'humidité relative [Pavlik et al. (2011)]

Par ailleurs, on peut calculer la saturation finale d'eau sous humidité relative avec la valeur de m_f

$$S_f = \frac{m_{initiale} - m_f - m_{sec}}{m_{saturation} - m_{sec}} \quad (II.11)$$

où S_f est la saturation finale déterminée par la simulation selon l'équation II.10, $m_{initiale}$ est la masse initiale de l'échantillon, $m_{saturation}$ est la masse de l'échantillon saturé et m_{sec} est la masse de l'échantillon sec. Et la courbe de la saturation S_f en fonction de l'humidité relative est justement l'isotherme de sorption. Donc, on peut estimer l'isotherme de

sorption des deux matériaux avec les valeurs de m_f , voir Figures II.13. On peut trouver que le mortier de référence a une saturation en eau plus basse que le béton de Soulaines à la même humidité relative, lorsque l'humidité relative est moindre que 92%. Par exemple, à l'humidité relative de 85%, la saturation du béton de Soulaines est entre 0,69 et 0,75 tandis que le mortier de référence a une saturation de 0,47, voir II.13. Selon l'équation de Kelvin, à l'humidité relative de 85%, les pores dont le rayon est plus grand que 7nm sont vidés. Ceci indique que les pores dont le rayon est moindre que 7nm occupent une plus petite partie de porosité du mortier de référence. En d'autres termes, par rapport au béton de Soulaines, le mortier de référence, qui a un rapport eau-ciment plus haut, a une courbe de distribution de porosité déviant vers les pores plus grands. *Mehta et Monteiro* (2006) trouvent la même tendance lorsque le rapport eau-ciment de la pâte de ciment augmente, voir Figure II.14. *Rougelot* (2008) montre aussi que un béton avec un rapport eau-ciment de 0,8 a un isotherme de désorption sous celui d'un béton avec un rapport eau-ciment de 0,5. Par ailleurs, lorsque l'humidité relative est égale ou supérieure à 92%, les deux matériaux peuvent presque obtenir à la même saturation pour la même humidité relative, voir Figure II.13. Ceci indique que le mortier a une plus grande fraction de pores dont le rayon est supérieur à 12,9nm selon l'équation de Kelvin. Alors, pour la même humidité relative importante, on peut remplir plus de porosité absolue pour le mortier. Mais la porosité totale du mortier est plus grande. On peut donc obtenir le même niveau de saturation pour les deux matériaux à la même humidité relative.

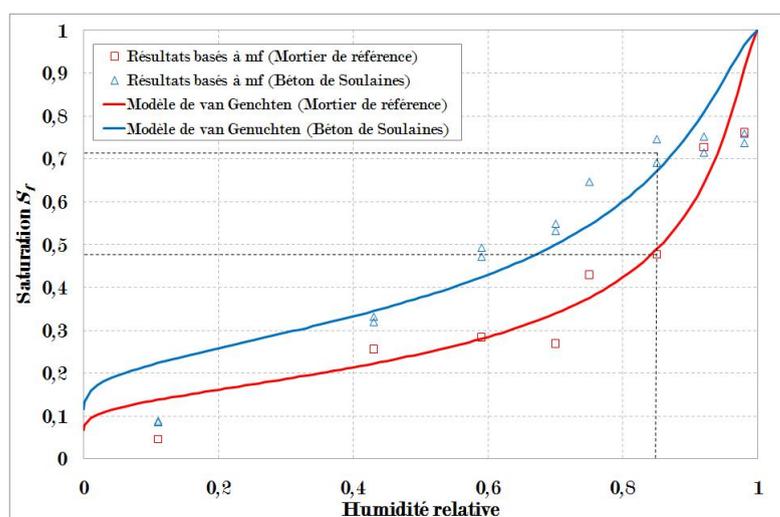


FIGURE II.13 – Isotherme de sorption à base du m_f

On essaie de modéliser l'isotherme de sorption selon le modèle de van Genuchten et l'équation de Kelvin-Laplace.

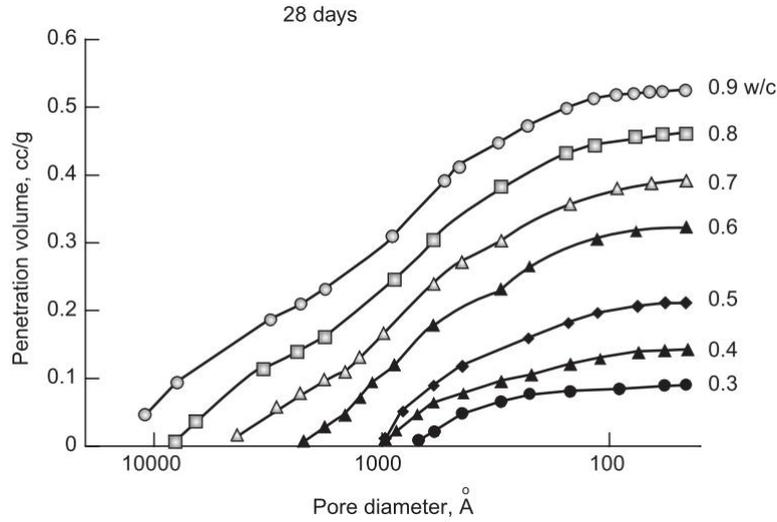


FIGURE II.14 – Effet du rapport eau-ciment sur la distribution de taille de pores [Mehta et Monteiro (2006)]

Modèle de van Genuchten [van Genuchten (1980)]

$$S_w = \frac{1}{\left[1 + \left(\frac{p_c}{p_r}\right)^n\right]^m} \quad (\text{II.12})$$

Equation de Kelvin-Laplace

$$\ln(HR) = \frac{V_m}{RT} p_c \quad (\text{II.13})$$

où S_w est la saturation en eau, p_c est la pression capillaire, m et p_r sont deux paramètres qui se rapportent à la distribution de taille de pores, HR est l'humidité relative, V_m est le volume molaire de l'eau liquide, R est la constante de gaz parfait, T est la température.

Les valeurs des paramètre m et p_r sont déterminées par la méthode des moindres carrés (Annexe A), voir Tableau II.6. La modélisation peut refléter généralement la tendance de l'isotherme de sorption, voir Figure II.13. Mais la modélisation surestime la saturation lorsque l'humidité relative est très importante (dans le cas de HR98%) ou très faible (dans le cas de HR11%). Cette insuffisance du modèle de van Genuchten et l'amélioration du modèle de rétention seront discutées dans le chapitre V.

II.4.4 Perméabilité relative au gaz

La perméabilité relative au gaz en fonction de la saturation en eau donne une courbe concave, voir Figure II.15. Monlouis-Bonnaire et al. (2004) trouve la même tendance pour un béton, voire Figure II.16. Care et Derkx (2011) trouve aussi la même tendance pour

des pâtes de ciment à différents rapports eau-ciment.

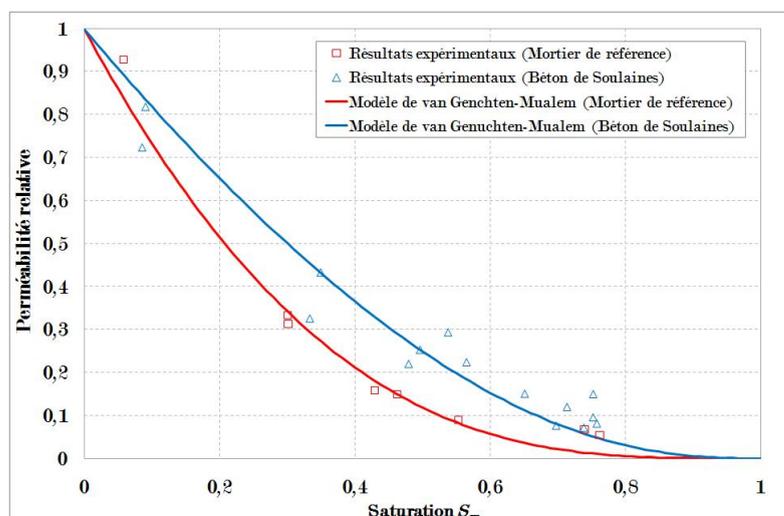


FIGURE II.15 – Perméabilité relative au gaz en fonction de la saturation en eau

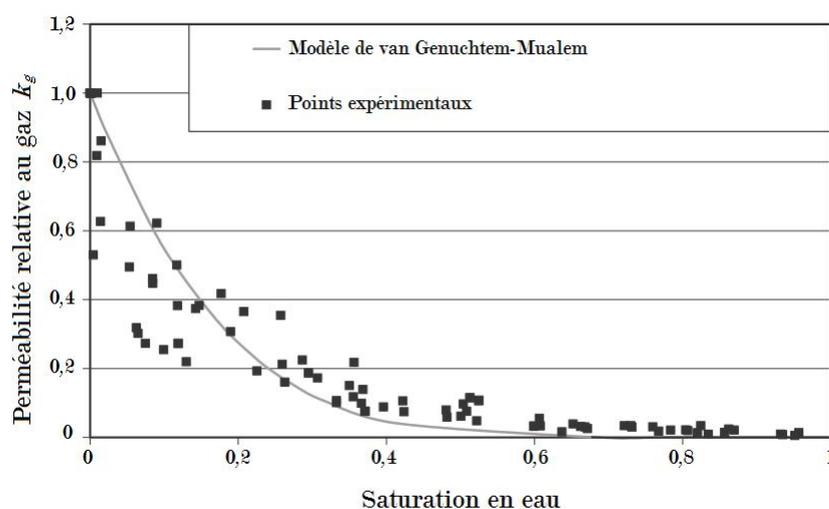


FIGURE II.16 – Perméabilité relative au gaz d'un béton [*Monlouis-Bonnaire et al. (2004)*]

On essaie de modéliser les résultats de la perméabilité relative au gaz avec le modèle de van Genuchten-Mualem [*Chen et al. (1999)*]

$$k_{g,r} = (1 - S_w)^\eta \left(1 - S_w^{\frac{1}{m}}\right)^{2m} \quad (\text{II.14})$$

où m est le paramètre inconnu qui vient du modèle de van Genuchten et il est entre $[0;1]$ par défaut. η est égal à 0,5 par défaut, mais *Monlouis-Bonnaire et al. (2004)* trouve que cette valeur est souvent plus grande que 1 pour le béton.

TABLE II.6 – Valeurs des paramètres du modèle de van Geunuchten-Mualem

Paramètre	Mortier de référence	Béton de Soulaines	<i>Monlouis-Bonnaire et al. (2004)</i>
m	0,333	0,315	0,56
η	2,95	1,90	5,5
p_r (Pa)	$5,71 \times 10^6$	$1,16 \times 10^7$	

La valeur du paramètre m a été déterminée par la modélisation de l'isotherme de sorption et donc il existe encore un seul paramètre inconnu η qui est déterminé par la méthode des moindres carrés, voir Tableau II.6. On peut constater une concordance entre la modélisation et le résultat expérimental, voir Figure II.15. La modélisation tend à sous-estimer la perméabilité relative au gaz lorsque la saturation est supérieure à 0,7, voir Figure II.15. *Monlouis-Bonnaire et al. (2004)* trouvent le même phénomène de sous-estimation, voir Figure II.16.

La perméabilité relative au gaz du béton de Soulaines est légèrement plus grande que celle du mortier de référence à la même saturation, voir Figure II.15. En d'autres termes, lors de la désaturation, les pores plus petits, qui sont encore remplis par l'eau, contribuent une fraction plus faible à la perméabilité relative au gaz dans le mortier que dans le béton. Ceci indique que les pores plus grands occupent une fraction de porosité plus grande pour le mortier que pour le béton et que la distribution de porosité du béton est plus concentrée que celle du mortier. Les résultats de la porosimétrie de mercure confirment aussi cette conclusion, voir Figure II.17.

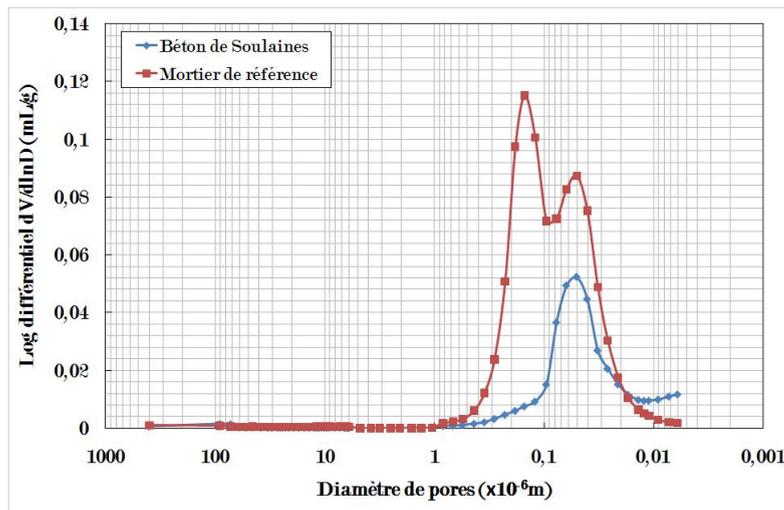


FIGURE II.17 – Distribution de porosité du mortier de référence et du béton de Soulaines (Test de porosimétrie de mercure)

II.5 Conclusion

Deux différentes méthodes, « Régime Permanent » et « Pulse Test », ont été utilisées pour mesurer la perméabilité au gaz de deux matériaux, un mortier de référence et un béton de Soulaines. Les deux méthodes sont cohérentes et on a pu obtenir quasiment la même perméabilité avec les deux méthodes.

Le mortier de référence a une porosité moyenne de 0,214 et une perméabilité saturée au gaz de l'ordre de grandeur de 10^{-17}m^2 tandis que le béton de Soulaines a une porosité moyenne de 0,117 et une perméabilité saturée au gaz de l'ordre de grandeur de 10^{-18}m^2 . Le mortier de référence, qui a plus de grands pores, est donc plus poreux et plus perméable. Par ailleurs, on peut constater une corrélation entre la porosité et la perméabilité saturée au gaz pour le mortier de référence.

Pour la même humidité relative, le mortier de référence a une saturation en eau plus basse que le béton de Soulaines. Ceci indique aussi que le mortier de référence doit avoir une courbe de distribution de taille de pores déviant vers les pores plus grands. Avec une série de fonctions exponentielles, on peut simuler le processus de sorption sous humidité relative et estimer l'isotherme de sorption.

La perméabilité relative au gaz du béton de Soulaines est légèrement plus grande que celle du mortier de référence pour la même saturation, car la distribution de porosité du béton est plus concentrée vers les pores plus fins que celle du mortier. La perméabilité relative au gaz en fonction de la saturation donne une courbe concave qui peut être modélisée par le modèle de van Genuchten-Mualem.

II. Mesure expérimentale de la perméabilité relative au gaz

Chapitre III

Essais visant à mesurer la perméabilité relative à l'eau

Introduction

Ce chapitre propose une méthode de mesure de la perméabilité relative à l'eau de deux bétons qui seront utilisés dans un ouvrage profond de stockage de déchets radioactifs.

La première partie de ce chapitre donne une description des matériaux étudiés.

La deuxième partie détaille le système de mesure de la perméabilité saturée à l'eau.

La méthode de mesure de la perméabilité effective à l'eau est ensuite proposée.

La partie suivante présente le plan de mesure de la perméabilité relative à l'eau.

Enfin, les résultats de la campagne expérimentale sont exposés et discutés.

III.1 Matériaux et échantillons

Deux bétons, qui seront utilisés dans un ouvrage profond de stockage de déchets radioactifs (Figure 3), sont testés. Les deux bétons sont nommés respectivement « CEM I » et « CEM V » d'après le type de ciment et leurs formulations sont données dans le tableau III.1.

TABLE III.1 – Formulations des matériaux - béton CEM I et béton CEM V [*Andra (2001a)*, *Andra (2001b)*]

Composants	Béton CEM I		Béton CEM V	
	Nature	Quantité (kg·m ⁻³)	Nature	Quantité (kg·m ⁻³)
Ciment	CEM I 52.5R	400	CEM V/A 42.5N	450
Sable	Silico-Calcaire (0-4mm)	858	Silico-Calcaire (0-4mm)	800
Gravillons	Silico-Calcaire (4-8mm)	945	Silico-Calcaire (4-8mm)	984
Superplastifiant	Glénium 27	10	Glénium 27	11,5
Eau	–	171*	–	176*
Rapport E/C	0,43		0,39	

*L'eau efficace = l'eau actuelle + l'eau dans le Glénium

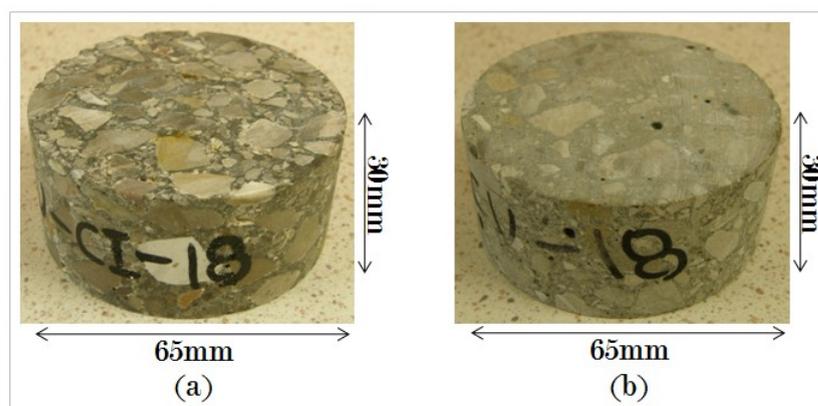


FIGURE III.1 – Echantillons : (a) Béton CEM I; (b) Béton CEM V

Les bétons sont coulés en forme de petites poutres de 150mm de hauteur, de 150mm de largeur et de 1000mm de longueur. Le décoffrage se fait 3 jours plus tard et ensuite les

poutres sont mises dans l'eau pendant 3 mois. Et puis elles sont carottées en cylindres de 65mm de diamètre suivant la hauteur. Ensuite chaque cylindre est coupé en quatre petits cylindres de 30mm de hauteur et les deux intermédiaires sont utilisés dans notre essais, voir Figure III.1.

III.2 Méthode de mesure de la perméabilité saturée à l'eau

La perméabilité saturée à l'eau est mesurée directement selon la loi de Darcy.

Un échantillon complètement saturé est placé dans une cellule (en pression du confinement de 5MPa fournie par une pompe manuelle ENERPAC) et une pression d'injection d'eau p_i est appliquée sur une extrémité de l'échantillon, voir Figure III.2. Cette pression d'eau est fournie par une pompe type Gilson qui permet un contrôle de la pression d'injection et qui permet de noter le volume d'eau injecté avec une précision meilleure que le micro-litre. L'autre extrémité de l'échantillon est mis dans une condition de drainage libre à la pression atmosphérique p_{atm} . L'eau s'écoule d'un côté à l'autre de l'échantillon par le gradient hydraulique. Après une période Δt , la perméabilité saturée à l'eau $k_{w,i}$ est donnée directement par la loi de Darcy

$$k_{w,i} = \frac{\mu_w V_i H}{A \Delta t p_i} \quad (\text{III.1})$$

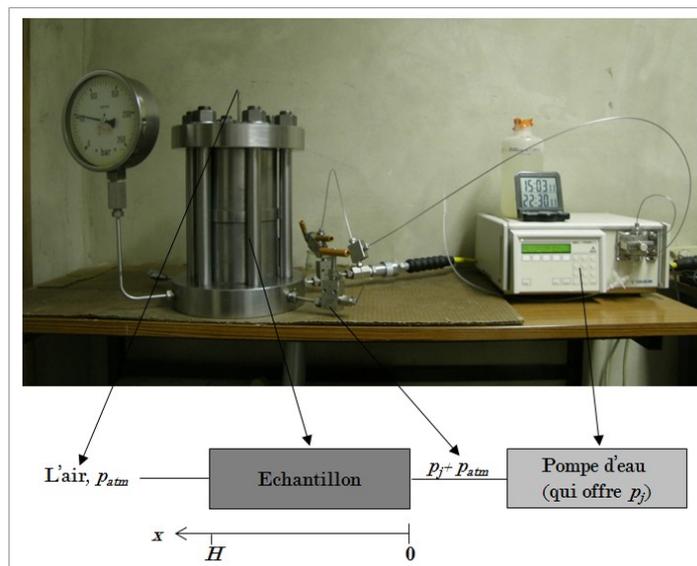


FIGURE III.2 – Système de mesure de la perméabilité saturée à l'eau

où μ_w est la viscosité d'eau, A est la section de l'échantillon, V_i est le volume d'eau traversant l'échantillon, H est la hauteur de l'échantillon, p_i est la pression d'injection.

III.3 Méthode de mesure de la perméabilité effective à l'eau

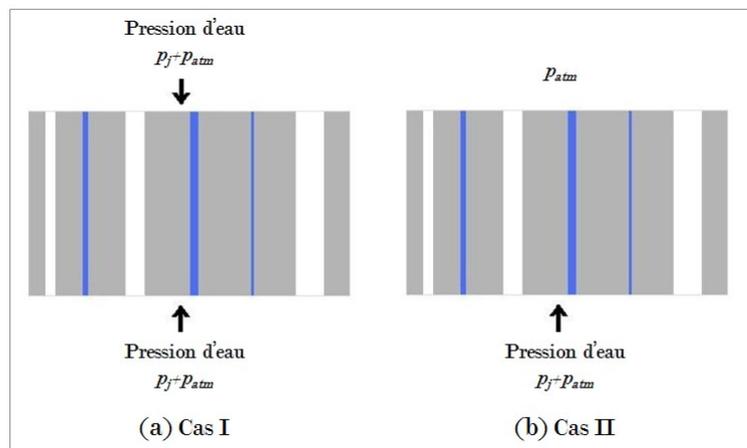


FIGURE III.3 – Schématisation du double test de la perméabilité effective à l'eau

Comme ce qu'on indique dans la section I.1.3, la difficulté de mesure de la perméabilité effective à l'eau est d'identifier le débit dû à la perméation Q_{per} . Quand on applique une pression d'eau sur le béton partiellement saturé, le gradient de pression entraîne l'écoulement d'eau dans les pores remplis par l'eau alors que la pression capillaire entraîne l'entrée d'eau dans les pores vides. Donc, le débit mesuré comprend deux parties - le débit de la perméation Q_{per} via les pores saturés et le débit de l'imbibition capillaire Q_{cap} via les pores vides. Pour identifier le débit Q_{per} , nous envisageons d'effectuer un double test, voir Figure III.3. Dans le cas I, l'eau est mise sous pression p_i de part et d'autre de l'échantillon et alors il n'y a pas de gradient de pression. On peut supposer dans ce cas que les pores saturés ne sont le siège d'aucun écoulement tandis que les pores vides sont remplis par la seule capillarité dont le moteur est la pression capillaire - bien plus grande que la pression d'injection p_i . Le volume d'eau injecté sera dû à la seule imbibition capillaire. Ce volume est noté V_{i-i} . Dans le cas II, la pression d'injection p_i est appliquée à un seul côté de l'échantillon, voir Figure III.3. Alors ce cas est avec gradient de pression et il va mobiliser simultanément de l'imbibition capillaire et de la perméation. Le volume injecté est noté V_{i-0} . A ce stade une nouvelle hypothèse est nécessaire ; elle consiste à supposer que dans le volume V_{i-0} la partie d'imbibition capillaire vaut la moitié du volume V_{i-i} puisque l'injection dans le cas II est d'un seul côté. On peut alors espérer isoler le débit

de perméabilité Q_{per} par

$$Q_{per} = \frac{V_{i-0} - V_{i-i}/2}{t} \quad (\text{III.2})$$

Ensuite on peut calculer la perméabilité effective $k_{w,e}$ à l'eau selon la loi de Darcy

$$k_{w,e} = \mu_w \frac{Q_{per} H}{A p_j} \quad (\text{III.3})$$

où μ_w est la viscosité d'eau, A est la section de l'échantillon, H est la hauteur de l'échantillon, p_j est la pression d'injection d'eau.

III.4 Plan de la mesure

La mesure se compose de 7 étapes : étape de prétraitement sous différentes humidités relatives, étape de mesure du débit Q_{cap} , étape de retraitement sous différentes humidités relatives, étape de mesure du débit de $Q_{per} + Q_{cap}$, étape de resaturation dans l'eau sous vide, étape de mesure de la perméabilité saturée à l'eau, étape de séchage à l'étuve de 65 °C.

a) Prétraitement sous différentes humidités relatives

Les échantillons sont mis sous différentes humidités relatives : 11%, 43%, 59%, 70%, 75%, 85%, 92% et 98% (la même méthode que celle présentée dans la section II.3). La masse stable à la fin de cette étape est notée $m_{e,XX,1}$.

b) Mesure du débit Q_{cap}

On applique une pression d'eau p_i aux deux extrémités de l'échantillon, voir Figure III.4. Le débit Q_{cap} est donné par

$$Q_{cap} = \frac{V_{i-i}}{2t} \quad (\text{III.4})$$

où V_{i-i} est le volume d'eau injecté par deux côtés de l'échantillon et $V_{i-i}/2$ est le volume d'entrée par un seul côté, t est le temps.

c) Retraitement sous différentes humidités relatives

L'échantillon qui a été resaturé dans l'étape précédente est remis sous la même humidité relative que celle dans la première étape. La masse stable à la fin de cette étape est notée $m_{e,XX,2}$.

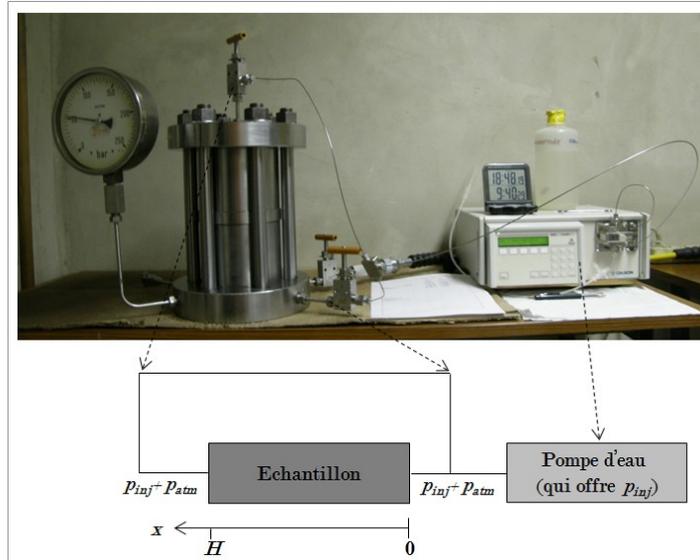


FIGURE III.4 – Schématisation de mesure du débit Q_{cap}

d) Mesure du débit $Q_{per} + Q_{cap}$

On injecte de l'eau avec une pression p_i par un côté de l'échantillon et l'autre côté est sous la condition atmosphérique, voir Figure III.2. Le débit total $Q_{per} + Q_{cap}$ est donné par

$$Q_{per} + Q_{cap} = \frac{V_{i-0}}{t} \quad (III.5)$$

où V_{i-0} est le volume d'eau injecté, t est le temps.

e) Resaturation dans l'eau sous vide

L'échantillon est resaturé dans l'eau sous vide et on peut obtenir la masse de l'échantillon saturé $m_{st,XX}$.

f) Mesure de la perméabilité saturée à l'eau

La perméabilité saturée à l'eau est mesurée et elle est notée $k_{w,i,XX}$.

g) Séchage à l'étuve de 65 °C

L'échantillon est séché dans une étuve de 65 °C. A la fin de cette étape, la masse stable est notée $m_{sc,XX}$.

Avec les résultats des 7 étapes au-dessus, on peut calculer la porosité φ , les saturations finales $S_{XX,1}$ et $S_{XX,2}$ à la fin de traitement et de retraitement sous différentes humidités relatives, la perméabilité effective à l'eau $k_{w,e,XX}$ et la perméabilité relative à l'eau $k_{w,r,XX}$

de chaque échantillon par

$$\varphi = \frac{m_{st,XX} - m_{sc,XX}}{\rho_w V_{ech}} \quad (III.6)$$

$$S_{XX,1} = \frac{m_{e,XX,1} - m_{sc,XX}}{m_{st,XX} - m_{sc,XX}} \quad (III.7)$$

$$S_{XX,2} = \frac{m_{e,XX,2} - m_{sc,XX}}{m_{st,XX} - m_{sc,XX}} \quad (III.8)$$

$$k_{w,e,XX} = \frac{\mu_w H Q_{per}}{p_i A} \quad (III.9)$$

$$k_{w,r,XX} = \frac{k_{w,e,XX}}{k_{w,i,XX}} \quad (III.10)$$

où ρ_w est la masse volumique d'eau, V_{ech} est le volume de l'échantillon, A est la section de l'échantillon, μ_w est la viscosité d'eau.

III.5 Résultats

III.5.1 Variation de masse sous humidité relative

Les variations de masse sont présentées aux figures III.5 et III.6. Les échantillons sont desaturés plus rapidement sous humidité relative plus basse. Car l'humidité relative plus basse offre un écart plus grand entre l'humidité relative ambiante et l'humidité relative intérieure dans le matériaux (en effet, le transfert de vapeur qui desature l'échantillon est provoqué par cet écart, section I.1)

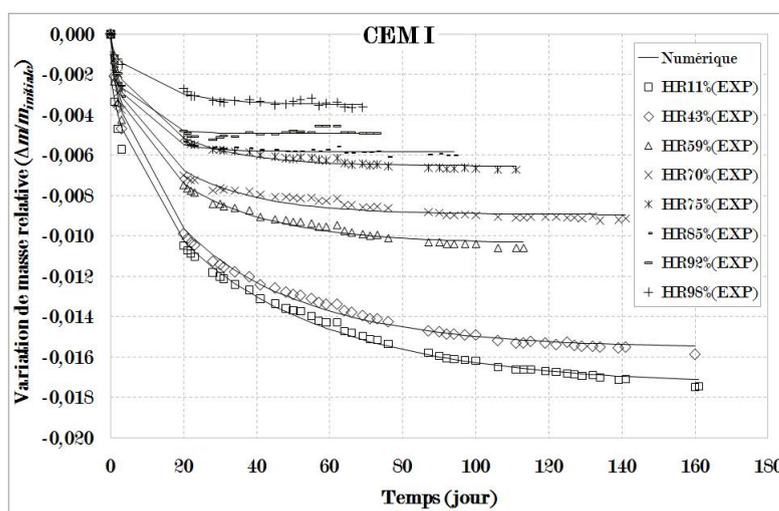


FIGURE III.5 – Variation de masse relative du béton CEM I sous différentes humidités relatives

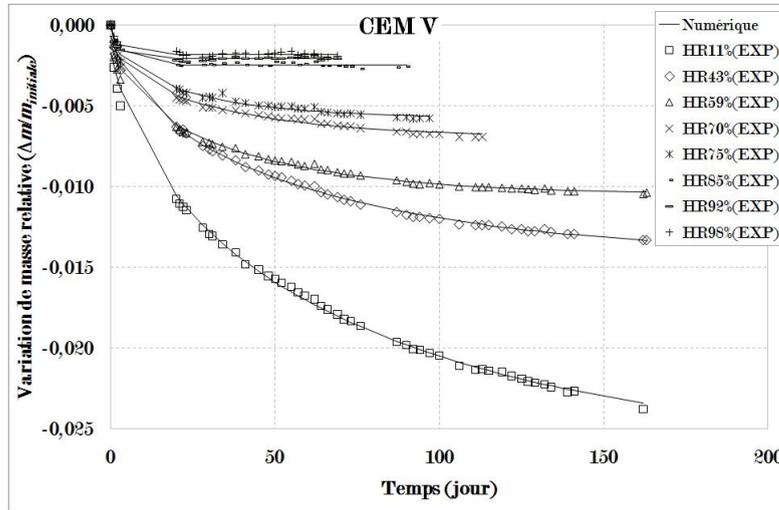


FIGURE III.6 – Variation de masse relative du béton CEM V sous différentes humidités relatives

La simulation avec l'équation II.10 peut rendre compte des résultats expérimentaux, voir Figures III.5 et III.6. Les valeurs des paramètres m_f et c dans la simulation sont présentées dans les tableaux III.2 et III.3.

TABLE III.2 – Valeurs des paramètres m_f et c dans la simulation du béton CEM I

HR	11%	43%	59%	70%	75%	85%	92%	98%
m_f (g)	4,32	3,85	2,53	2,23	1,67	1,46	1,25	0,88
c (heure ⁻¹)*	0,028	0,032	0,048	0,055	0,062	0,13	0,15	0,08

*Le paramètre c est proportionnel au coefficient de diffusion D : $c = D\pi^2/R^2$

TABLE III.3 – Valeurs des paramètres m_f et c dans la simulation du béton CEM V

HR	11%	43%	59%	70%	75%	85%	92%	98%
m_f (g)	5,84	3,28	2,43	1,60	1,34	0,59	0,49	0,44
c (heure ⁻¹)*	0,014	0,016	0,028	0,036	0,044	0,21	0,34	0,26

*Le paramètre c est proportionnel au coefficient de diffusion D : $c = D\pi^2/R^2$

Pour les bétons CEM I et CEM V, le paramètre c , qui est proportionnel au coefficient de diffusion D , augmente généralement lorsque l'humidité relative augmente sauf dans le cas de HR98%, voir Figure III.7 et Tableaux III.2 et III.3. Donc on peut dire que le coefficient de diffusion D augmente lorsque l'humidité relative augmente jusqu'à 92%. *Bazant*

et Najjar (1971) pensent aussi que le coefficient de diffusion de matériaux cimentaires augmente lorsque l'humidité relative augmente.

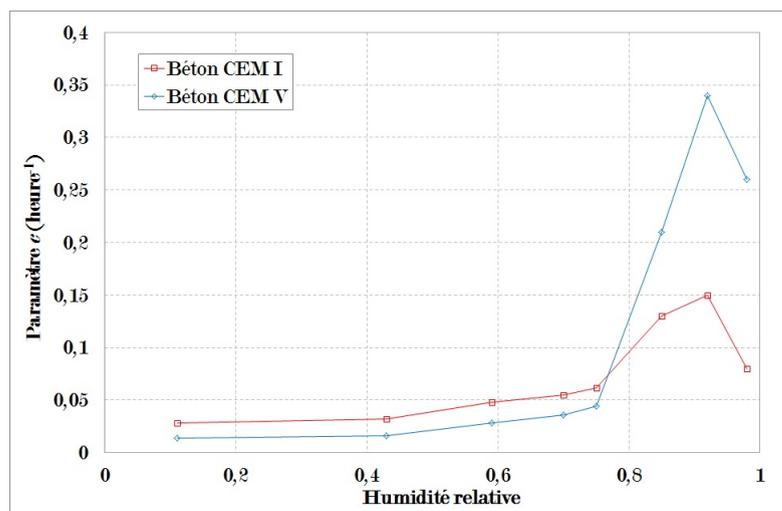


FIGURE III.7 – Valeurs du paramètre c qui se rapporte au coefficient de diffusion D

Par ailleurs, le cas de HR92%, au lieu du cas de HR98%, donne le coefficient maximal. *Grasley et al.* (2006) pensent que l'humidité relative intérieure du béton ne diminue pas avant que les pores dont le rayon est plus grand que 50-100nm soient vidés, car ces grands pores portent de l'eau libre et cette partie d'eau peut remplir les petits pores pendant le processus de désaturation. Et le rayon 50-100nm correspond à l'humidité relative de 97,87-98,93% selon l'équation de Kelvin. Donc, l'humidité relative de 98% justement forme un gradient d'humidité relative pour desorber l'eau libre mais elle ne peut pas former un gradient vrai d'humidité relative pour les autres pores plus petits, car les petits pores ne peuvent pas perdre l'eau avant que l'eau libre ne soit complètement desorbée. Donc, seuls les pores 50-100nm contribuent à la désorption sous humidité relative de 98%. Mais l'humidité relative de 92% peut former un vrai gradient d'humidité relative pour tous les pores. Tous les pores contribuent à la désorption. Donc, le cas de l'humidité relative de 92% a un coefficient de diffusion plus grand.

III.5.2 Perméabilité saturée à l'eau

Dans la mesure de la perméabilité saturée à l'eau, le volume d'eau injecté en fonction du temps n'est pas proportionnel au temps (surtout pour le béton CEM V), voir Figure III.8 et III.9. Si l'échantillon n'était pas complètement saturé, on pourrait penser que ce phénomène est normal. Donc on inspecte le changement de masse de l'échantillon avant et après la mesure de la perméabilité saturée à l'eau, voir Tableau III.4. La masse de l'échantillon augmente après la mesure. On constate qu'il y a des pores qui ne peuvent

III. Essais visant à mesurer la perméabilité relative à l'eau

pas être saturés par la méthode sous vide à l'eau mais une pression d'injection de 15 bars peut remplir ces pores. Par rapport au volume d'eau total, le volume d'eau injecté dû à ces pores est assez grand pour influencer la mesure de la perméabilité saturée à l'eau. Donc, pour éviter cette influence, la perméabilité saturée est estimée par les dernières données du volume d'eau injecté qui tendent à donner une droite (en effet, on suppose que tous les pores sont complètement saturés à la fin de mesure), voir Figure III.8 et III.9. *El-Dieb et Hooton (1995)* indiquent que l'injection doit durer 160 heures pour mesurer une perméabilité à l'eau de l'ordre de grandeur de 10^{-21}m^2 . Notre essais durent donc au moins une semaine (168 heures).

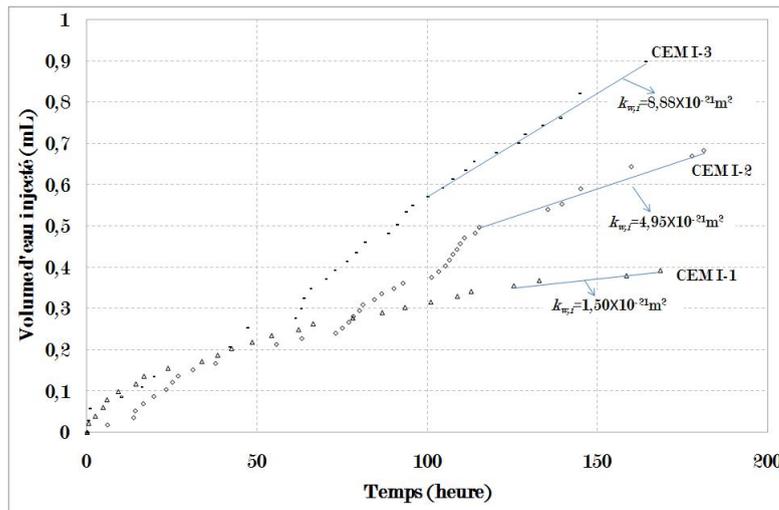


FIGURE III.8 – Perméabilité saturée à l'eau du béton CEM I

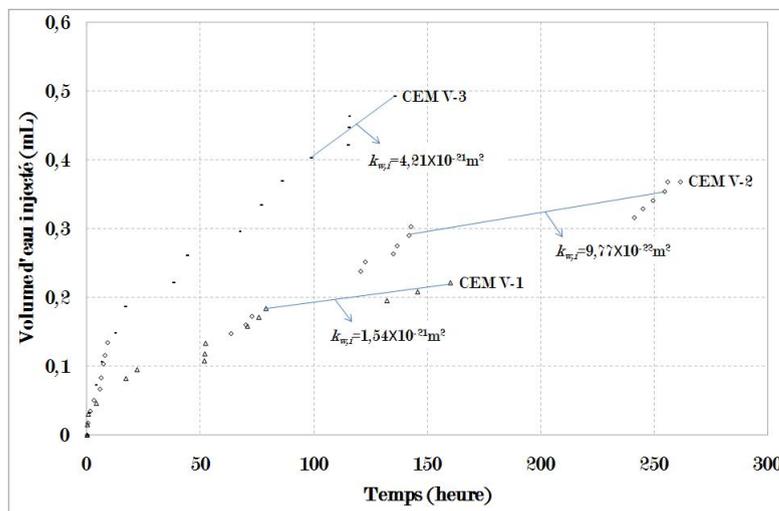


FIGURE III.9 – Perméabilité saturée à l'eau du béton CEM V

TABLE III.4 – Différence entre la masse après la mesure de la perméabilité à l'eau et la masse avant la mesure ($m_{\text{apres}} - m_{\text{avant}}$)

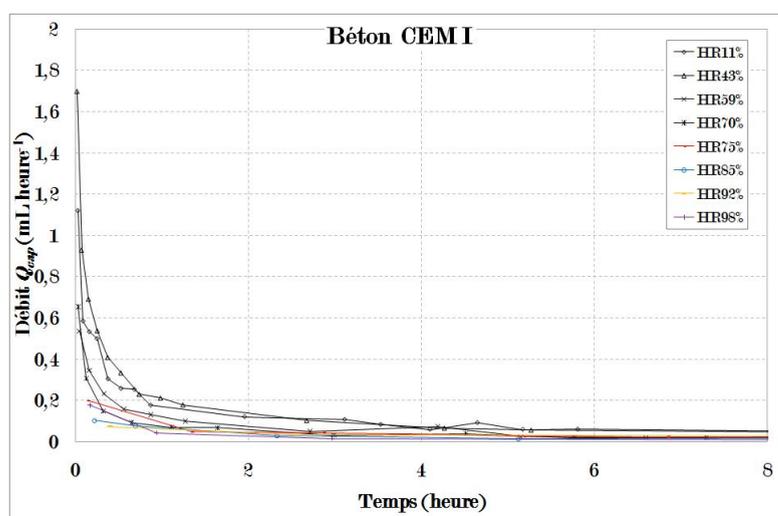
Echantillon	CEM I-1	CEM I-2	CEM I-3	CEM V-1	CEM V-2	CEM v-3
$m_{\text{apres}} - m_{\text{avant}}$ (g)	0,18	0,10	0,20	0,09	0,16	0,04

Enfin, on peut constater que les deux bétons tous sont très peu perméables à l'eau et la perméabilité saturée à l'eau est plus faible que 10^{-20}m^2 .

III.5.3 Débit de perméation Q_{cap}

Comme on indique dans la section III.4, le débit Q_{cap} est mesuré en injectant de l'eau aux deux côtés de l'échantillon avec une pression de 5 bars.

Le débit Q_{cap} diminue très rapidement (par exemple, après 2 heures de mesure le débit diminue de $1,7 \text{ mL}\cdot\text{heure}^{-1}$ à $0,2 \text{ mL}\cdot\text{heure}^{-1}$ dans le cas de HR43% pour les deux bétons) et après quelques heures il devient très faible quelque soit le point de départ, voir Figures III.10 et III.11. Ceci indique que les pores vides au début de la mesure sont rapidement remplis mais cette entrée d'eau diminue aussi rapidement, car la resaturation des pores vides diminue rapidement la pression capillaire et l'espace vide.

FIGURE III.10 – Débit dû à la capillarité Q_{cap} du béton CEM I

Le débit Q_{cap} au début de l'essai diminue généralement lorsque l'humidité relative de traitement augmente (voir Figures III.12 et III.13), car il existe moins de pores vides au début de l'essai lorsque l'humidité relative de traitement est plus grande. Mais il existe des exceptions. Par exemple, le débit Q_{cap} dans le cas de HR11% est moindre que celui

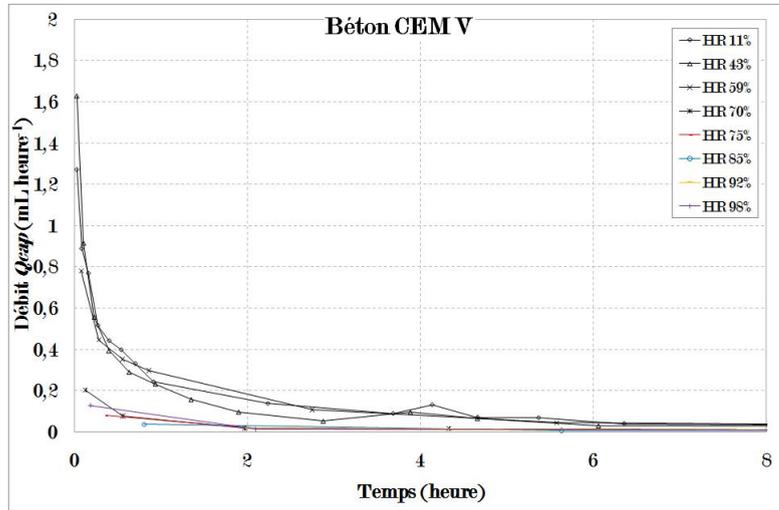


FIGURE III.11 – Débit dû à la capillarité Q_{cap} du béton CEM V

dans le cas de HR43% pour les deux bétons. Il y a une cause possible pour toutes les exceptions : les échantillons sont différents. La porosité des échantillons du béton CEM I varie entre 0,061 et 0,084 tandis que celle du béton CEM V varie entre 0,099 et 0,132, voir Figure III.14. Ces résultats sont conformes à la mesure *Brue (2009)* qui présente que la porosité du CEM I varie entre 0,056 et 0,092 alors que celle du béton CEM V varie entre 0,105 entre 0,132. Cette dispersion de la porosité peut être la cause des exceptions. Par exemple, l'échantillon dans le cas de HR11% a une porosité plus petite que l'échantillon dans le cas de HR43%.

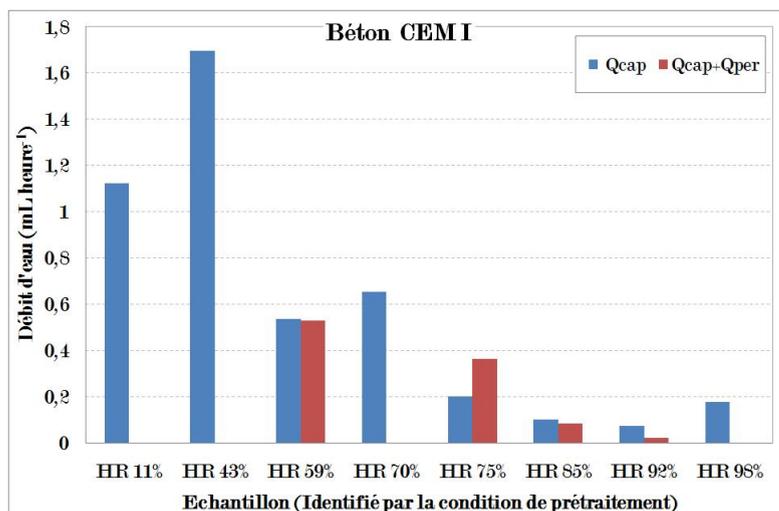


FIGURE III.12 – Débit dû à la capillarité Q_{cap} du béton CEM I au début de la mesure

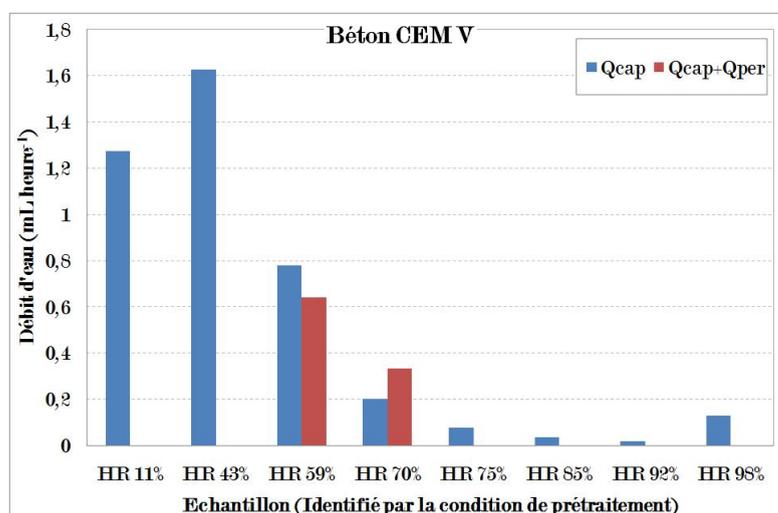
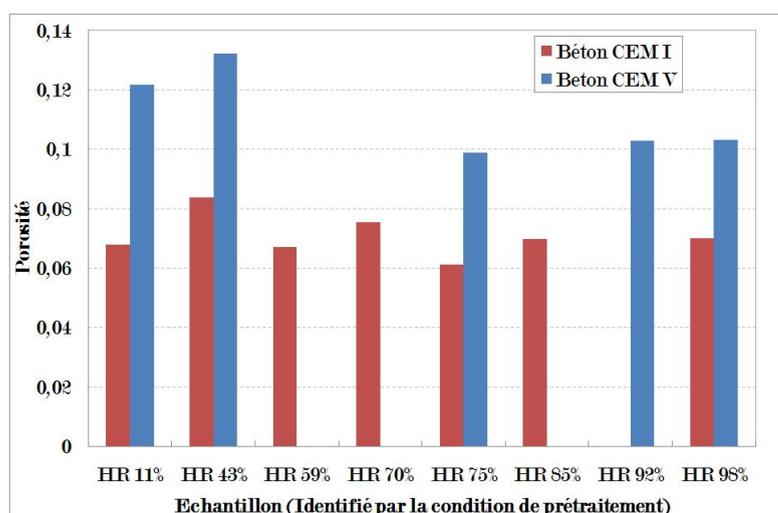
FIGURE III.13 – Débit dû à la capillarité Q_{cap} du béton CEM V au début de la mesure

FIGURE III.14 – Porosités des échantillons

III.5.4 Débit de perméation Q_{per}

Pour plupart des cas, le débit estimé Q_{cap} est plus grand que le débit $Q_{per} + Q_{cap}$, voir Figures III.12 et III.13. Alors le débit de la perméation Q_{per} est négatif. Il est acquis que la technique que nous proposons ne peut pas isoler le débit qui est dû à la perméation de ce qui est dû à l'imbibition capillaire.

La première cause possible de ce problème est la différence entre les masses initiales des échantillons pour la mesure du débit Q_{cap} et pour la mesure du débit $Q_{per} + Q_{cap}$, voir Tableau III.5. Lorsque la différence $m_2 - m_1$ est négative dans le cas de l'humidité relative de 59% pour les deux bétons, ceci indique qu'il existe plus de pores vides au début de l'essai de mesure du débit $Q_{per} + Q_{cap}$ que au début de l'essai de mesure du débit Q_{cap} .

TABLE III.5 – m_1 - Masse initiale d'échantillon de la mesure de Q_{cap} ; m_2 - Masse initiale d'échantillon de la mesure de $Q_{per} + Q_{cap}$; Q_{per} - Débit de perméation

Béton	Humidité relative de traitement	m_1 (g)	m_2 (g)	$m_2 - m_1$ (g)	Q_{per} (mL·s ⁻¹)
CEMI	59%	244,89	244,55	-0,34	-0,006
	75%	255,25	255,31	-0,06	0,164
	85%	249,85	249,85	0,00	-0,020
	92%	252,58	252,68	0,10	-0,053
CEMV	59%	233,43	233,02	-0,41	-0,140
	70%	237,36	239,68	0,32	0,130

Donc Q_{per} obtenu par la différence entre $Q_{per} + Q_{cap}$ et Q_{cap} doit être plus grand que le vrai Q_{per} , car cette différence inclut un volume d'eau supplémentaire dû aux pores vides supplémentaires. Mais Q_{per} est encore négatif pour les cas de HR59% pour le béton CEM I et le béton CEM V, voir Tableau III.5. D'autre part, pour le cas de HR85% du béton CEM I, la différence $m_2 - m_1$ est égale à 0 mais la valeur mesurée de Q_{per} est encore négative. Donc, la différence de masses initiales n'est pas la cause de ce phénomène.

Il existe encore une autre possibilité. C'est le problème de la supposition du modèle géométrique. Notre méthode est à base d'un modèle géométrique où les pores du milieu poreux se forment par des tubes parallèles, voir Figure III.3. Lorsqu'on utilise un modèle géométrique des tubes croisé qu'on indique dans la section I.2.1, il existe une possibilité que les distributions de pores vides aux deux côtés de l'échantillon soient différentes. Le débit Q_{cap} , qui est donné par le moitié de volume d'eau d'entrée par deux extrémités de l'échantillon, peut être plus grand ou plus petit que la partie du débit de la capillarité dans le débit $Q_{per} + Q_{cap}$, qui est donné par le volume d'eau d'entrée par un seul côté de l'échantillon. Et cette différence est peut-être déjà beaucoup plus grande que le vrai débit Q_{per} . En d'autres termes, il existe un contraste trop grand entre le volume d'entrée par la capillarité et celui provenant du gradient de pression (perméation).

III.6 Conclusion

Généralement, les deux bétons CEM I et CEM V sont desaturés plus rapidement sous l'humidité relative plus basse. Par ailleurs, on peut simuler le processus de sorption sous humidité relative avec une série de fonctions exponentielles.

La perméabilité saturée à l'eau des deux bétons est plus faible que 10^{-20} m².

La méthode que nous avons testée ne peut pas isoler l'écoulement par perméation de l'écoulement par capillarité. Pour les deux bétons CEM I et CEM V, l'écoulement

par la capillarité dans les pores non-remplis est prédominant dans l'écoulement total. L'écoulement de la perméation par les pores remplis est très faible devant l'écoulement capillaire.

Dans le cas de stockage de déchets radioactifs, le béton fabriquant les barrières sera d'abord desaturé par le système de ventilation pendant le remplissage et puis subira une resaturation à cause des apports de massif d'eau par l'argilite. Donc, l'imbibition capillaire est prédominante dans la resaturation du béton sur site et la perméabilité à l'eau de l'argilite, qui fournit l'eau au béton, deviendra le paramètre clef.

Chapitre IV

Mesure expérimentale de l'imbibition capillaire d'eau

Introduction

Ce chapitre étudie l'imbibition capillaire des matériaux cimentaires et son influence sur la perméabilité relative au gaz.

Les bétons CEM I et CEM V, dont on a tenté de mesurer la perméabilité relative à l'eau, sont testés dans ce chapitre. Le mortier de référence et le béton de Soulaines sont aussi concernés dans la mesure de l'imbibition capillaire sans pression d'injection.

Les méthodes de mesure de l'imbibition capillaire d'eau sans et sous pression d'injection sont détaillées dans la deuxième partie de ce chapitre.

Enfin, les résultats expérimentaux sont présentés. L'influence de la pression d'injection sur l'imbibition capillaire, les coefficients de l'imbibition capillaire et l'effet de l'imbibition capillaire sur la perméabilité relative au gaz sont détaillés et discutés.

IV.1 Matériaux et échantillons

Les bétons CEM I et CEM V qu'on utilise dans la mesure de perméabilité relative à l'eau (section III.1) sont testés dans ce chapitre. Par ailleurs, le mortier de référence et le béton de Soulaines, dont la perméabilité relative au gaz a été mesurée (section II.1), sont aussi utilisés dans la mesure d'imbibition capillaire sans pression d'injection.

Les échantillons ont la même taille : 65mm de diamètre et 30mm de hauteur. Les échantillons sont initialement séchés dans une étuve à une température de 65 °C.

IV.2 Mesure de l'imbibition capillaire d'eau sans pression d'injection

Un échantillon initialement sec, dont la surface latérale est étanchée par adhésif, est placé dans un dessiccateur de manière à ce que seuls 2mm de l'échantillon soient immergés dans l'eau (voir Figure IV.1), qui va ainsi entrer dans l'échantillon par capillarité. Au temps $t=0,1h, 0,2h, 0,5h, 1h, 4h, 8h, 1j, 2j, \dots$, on sort rapidement l'échantillon, on le sèche superficiellement, on le pèse avec une balance de précision de 0,01g et enfin on le remet dans le dessiccateur. Ainsi le volume d'eau entrant dans l'échantillon $V_{cap,HR}$ peut être déterminé par le changement de masse.

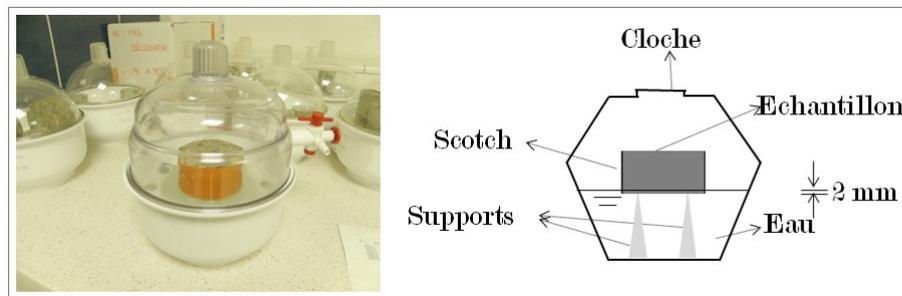


FIGURE IV.1 – Essai d'imbibition capillaire sans pression d'injection

Cependant l'autre face de l'échantillon est exposé à l'air dont l'humidité relative est supposée être de 100%. L'échantillon adsorbe aussi de l'eau par cette face à cause de la sorption. Donc, le volume d'eau d'entrée se compose de deux parties : une partie due à la capillarité et l'autre partie par la sorption sous humidité relative de 100%. On néglige souvent la prise d'eau par la sorption sous humidité relative 100% lorsqu'on mesure le coefficient de l'imbibition capillaire, car la mesure dure généralement quelques heures. Mais il est nécessaire d'étudier l'imbibition capillaire à une plus longue période pour les matériaux servant au stockage à long terme. Alors l'essai d'imbibition capillaire dans cette thèse se fait environ 1 mois. Dans ce cas, la prise d'eau sous humidité relative

100% joue probablement un rôle important. Donc, pour identifier l'influence possible de la sorption sous humidité relative 100%, un essai de référence est effectué, voir Figure IV.2. Un échantillon initialement sec est placé juste au-dessus de l'eau. La surface latérale est étanchée par adhésif et deux extrémités de l'échantillon sont sous humidité relative de 100%. Le volume d'eau d'entrée par l'adsorption $V_{HR,HR}$ est obtenu par le changement de masse de l'échantillon.

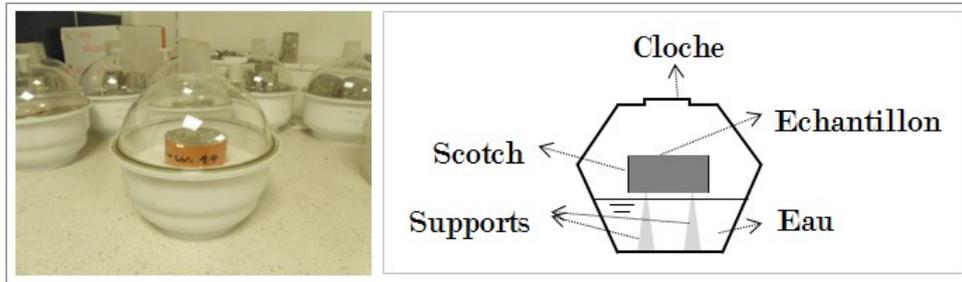


FIGURE IV.2 – Essai d'adsorption sous humidité relative de 100%

On suppose alors que le volume d'eau introduit par la seule imbibition capillaire (V_{cap}) est donné par

$$V_{cap} = V_{cap,HR} - \frac{1}{2}V_{HR,HR} \quad (IV.1)$$

IV.3 Mesure de l'imbibition capillaire d'eau sous pression d'injection

Cette mesure est réalisée par le même système expérimental utilisé dans l'essai de perméabilité effective à l'eau (section III.3). L'échantillon est initialement sec. Donc, sur la face inférieure de l'échantillon, deux types de pression coexistent - pression capillaire et pression d'injection - qui vont ensemble provoquer un écoulement d'eau dans les pores vides. Le volume d'eau d'entrée est comparé avec le résultat de l'essai d'imbibition capillaire sans pression d'injection pour étudier l'influence de la pression extérieure sur l'imbibition capillaire.

IV.4 Mesure de la perméabilité relative au gaz à différents niveaux d'imbibition capillaire

Dans le chapitre II, on a mesuré la perméabilité relative au gaz à différentes saturations obtenues par sorption sous différentes humidités relatives. L'imbibition capillaire est une

autre méthode pour obtenir différentes saturations dans les matériaux cimentaires. Dans cette partie, on mesure la perméabilité relative au gaz à différentes saturations obtenues par imbibition capillaire pour analyser la différence entre la répartition d'eau obtenue par imbibition capillaire et celle obtenue par sorption sous humidité relative.

La perméabilité au gaz de l'échantillon sec est d'abord mesurée. Ensuite, on effectue un essai d'imbibition capillaire sans pression d'injection. Au temps $t=0,1\text{h}, 0,2\text{h}, 0,5\text{h}, 1\text{h}, 4\text{h}, 8\text{h}, 1\text{j}, 2\text{j}, \dots$, on sort l'échantillon et on mesure sa perméabilité effective au gaz par la méthode de « Pulse Test ».

IV.5 Résultats

IV.5.1 Influence de la pression d'injection sur l'imbibition capillaire

La pression d'injection accélère l'imbibition d'eau, voir Figures IV.3 et IV.4. Selon l'équation de Laplace, une pression 15 bars correspond aux pores dont le rayon est de 10^{-7}m , voir Figure IV.5. Donc, la pression d'injection $p_{inj}=15\text{bar}$ est plus grande que la pression capillaire relative aux pores dont le rayon est plus grand que 10^{-7}m . Ceci indique que la pression d'injection $p_{inj}=15\text{bar}$ peut effectivement accélérer l'entrée d'eau dans ce type de pores qui occupent 27% de la porosité pour le béton CEM I et 21% pour le béton CEM V, voir Figure IV.5. Pour le cas de $p_{inj}=5\text{bar}$, l'accélération d'imbibition capillaire est moins importante que celle dans le cas de $p_{inj}=15\text{bar}$. On a vu également que la perméabilité ne jouait qu'un rôle marginal. La différence peut donc être attribuée à la capillarité.

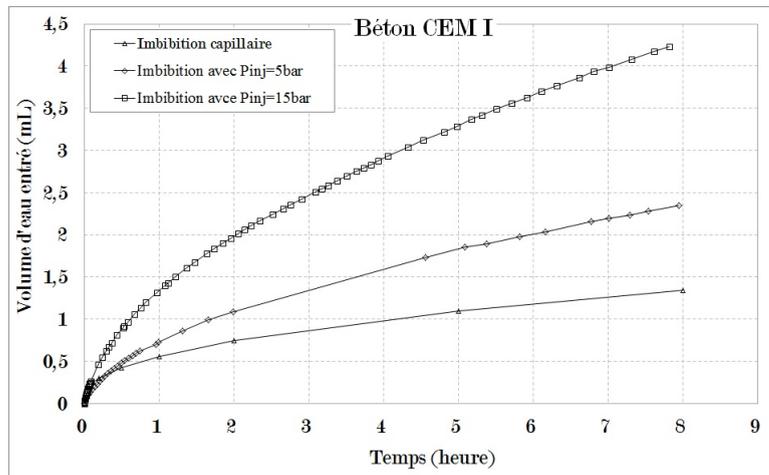


FIGURE IV.3 – Imbibition capillaire sans et avec pression d'injection (béton CEM I)

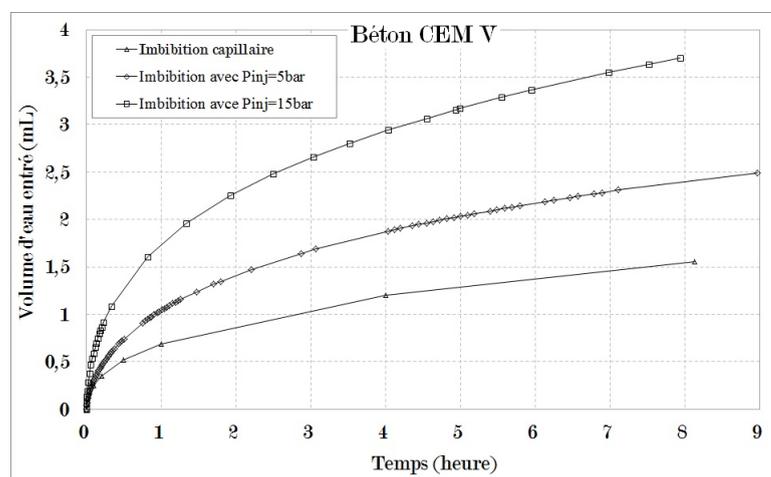


FIGURE IV.4 – Imbibition capillaire sans et avec pression d’injection (béton CEM V)

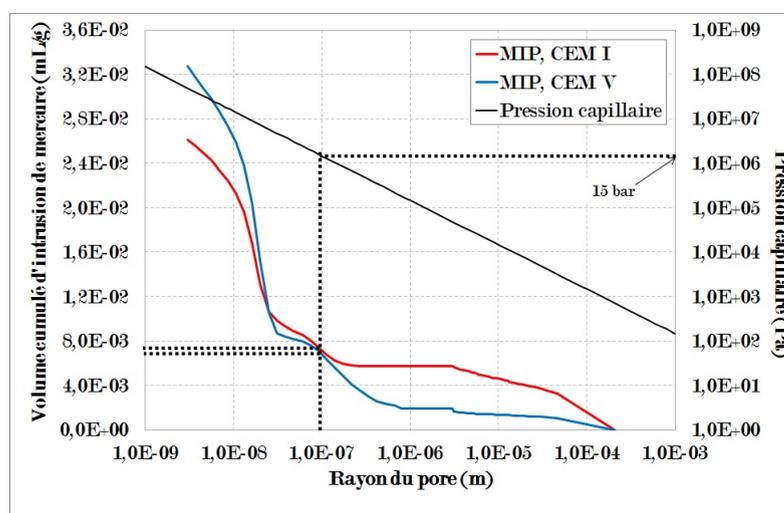


FIGURE IV.5 – Distribution de taille de pores des bétons CEM I et CEM V (résultats du test d'intrusion de mercure)

Lorsque ces grands pores qui peuvent être influencés par la pression d'injection sont complètement saturés, on peut penser que l'effet d'accélération va disparaître et que la vitesse d'imbibition diminuera à la vitesse d'imbibition sans pression d'injection. Pour vérifier cette conclusion, on inspecte l'injection d'eau sous une pression d'injection $p_{inj}=15\text{bar}$ pendant une période plus longue, voir Figures IV.6 et IV.7. Pour le béton CEM V, l'injection d'eau sous pression, logiquement, se ralentit largement à la fin de l'essai et la vitesse d'injection diminue au même niveau que celle d'imbibition sans pression. Mais pour le béton CEM I, après une semaine d'injection, le volume d'eau injecté (16,7 mL) excède le volume d'eau nécessaire pour complètement saturer l'échantillon (8,5 mL) du béton CEM I et la vitesse d'injection reste plus grande que celle d'imbibition sans pression. On peut

penser que l'imbibition s'accompagne maintenant d'une perméation significative. La mesure de perméabilité à la fin d'imbibition à 15 bars donne pour cet échantillon $4 \times 10^{-20} \text{m}^2$. L'ordre de grandeur pour des échantillons n'ayant subi aucun séchage-resaturation préalable est de 10^{-21}m^2 . On peut supposer que 3 cycles de séchage-resaturation ont changé la structure de pores et provoqué la microfissuration (en fait, l'échantillon a d'abord été séché à la température de 65°C et puis a été imbibé par de l'eau sans pression. Ensuite, il a été reséché et puis resaturé sous pression d'injection 5 bar. Enfin, il a subi un troisième séchage pour l'essai d'imbibition sous pression d'injection 15 bar).

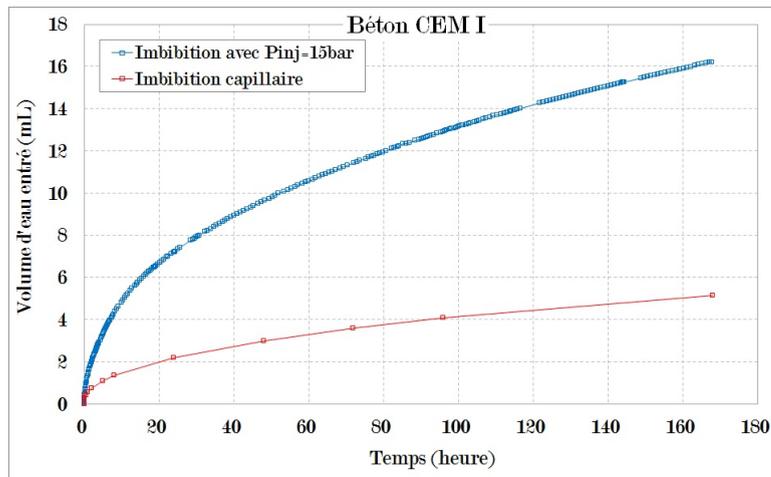


FIGURE IV.6 – Imbibition capillaire sans et avec pression d'injection sur échantillon sec pendant une semaine(CEM I)

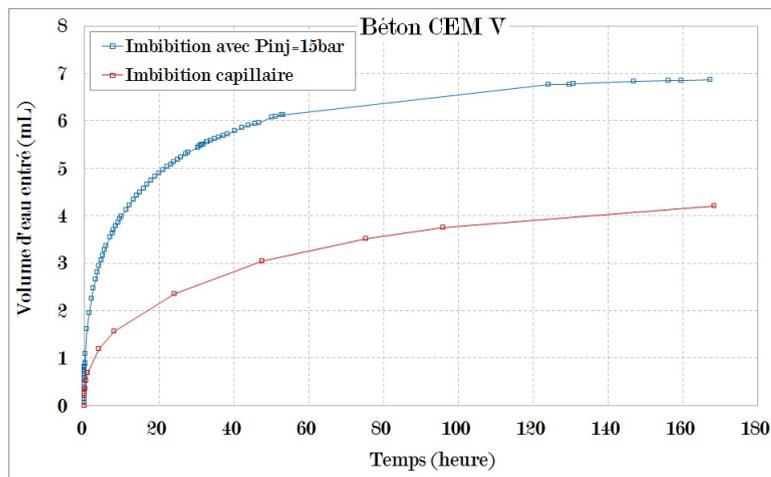


FIGURE IV.7 – Imbibition capillaire sans et avec pression d'injection sur échantillon sec pendant une semaine(CEM V)

IV.5.2 Sorptivité capillaire

L'écoulement d'imbibition capillaire peut être décrit par l'équation IV.2

$$i = \frac{V(t)}{A} = s\sqrt{t} \quad (\text{IV.2})$$

où s est le coefficient de l'imbibition capillaire (ou la sorptivité) et désigne la capacité d'imbibition capillaire d'un milieu poreux.

La sorptivité capillaire s est calculée, sur la base des résultats expérimentaux pendant la première heure d'imbibition capillaire, voir Tableau IV.1. Le coefficient s n'a pas de corrélation avec la porosité moyenne. Selon les équations I.14 et I.15, la distribution de porosité influence le coefficient s . Ainsi on peut penser que la distribution de porosité des matériaux cimentaires joue un rôle important dans le coefficient s et l'analyse de la distribution de porosité (par exemple, la porosimétrie de mercure) pourra donner plus d'information.

TABLE IV.1 – Coefficients de sorption capillaire

Echantillons	Coefficient d'imbibition capillaire s (mm·heure ^{-1/2})		Porosité moyenne
	$s = \frac{V_{cap,HR}}{At^{0,5}}$	$s = \frac{V_{cap}}{At^{0,5}}$	
CEM I ($E/C = 0,43$)	0,2493	0,2471	0,086
CEM V ($E/C = 0,39$)	0,3715	0,3678	0,120
Mortier de référence ($E/C = 0,8$)	0,3740	0,3721	0,217
Béton de Soulaines	0,4116	0,4102	0,114

Par ailleurs, on peut constater une très faible influence de l'adsorption sous humidité relative de 100% de l'autre côté de l'échantillon sur l'imbibition capillaire pendant la première heure, Figures IV.8 et IV.9. Ceci indique qu'il existe un contraste très grand entre le volume d'entrée par la capillarité et celui provenant du gradient d'humidité relative. En d'autres termes, les cinétiques des deux phénomènes sont tout à fait différentes.

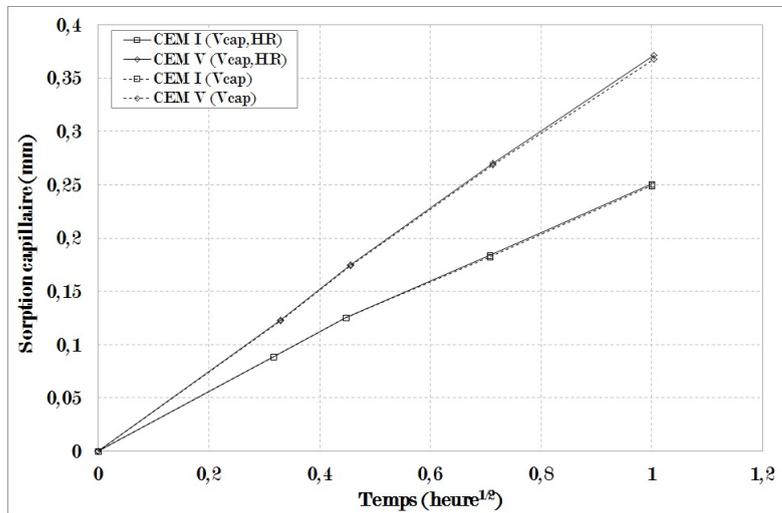


FIGURE IV.8 – Sorption capillaire des bétons CEM I et CEM V (la première heure)

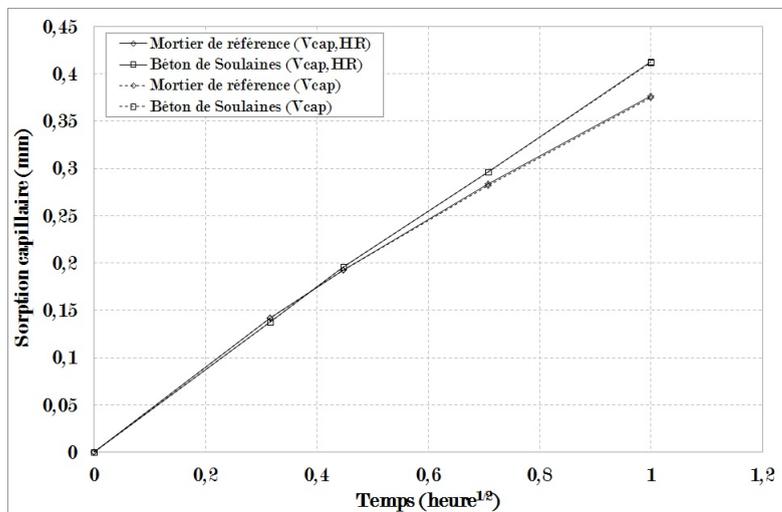


FIGURE IV.9 – Sorption capillaire du mortier de référence et du béton de Soulaines (la première heure)

Si on inspecte la sorption capillaire pendant une période plus longue (environ 1 mois), on peut trouver que l'imbibition capillaire devient faible tandis que le volume d'eau total augmente encore, voir Figures IV.10 et IV.11. *Martys et Ferraris (1997)* trouvent aussi ce phénomène pour un béton, voir Figure IV.12.

Il existe quelques causes possibles : (1) Si l'échantillon est assez haut, la pente de la courbe d'imbibition capillaire va diminuer quand la gravité de la colonne d'eau arrive au même l'ordre de grandeur que la pression capillaire, car l'effet de gravité est négligé dans l'équation (IV.2). Cependant la hauteur d'échantillon dans les essais de ce chapitre est 0,03m et la pression maximale de la gravité est 300Pa, ce qui est moins grand que la

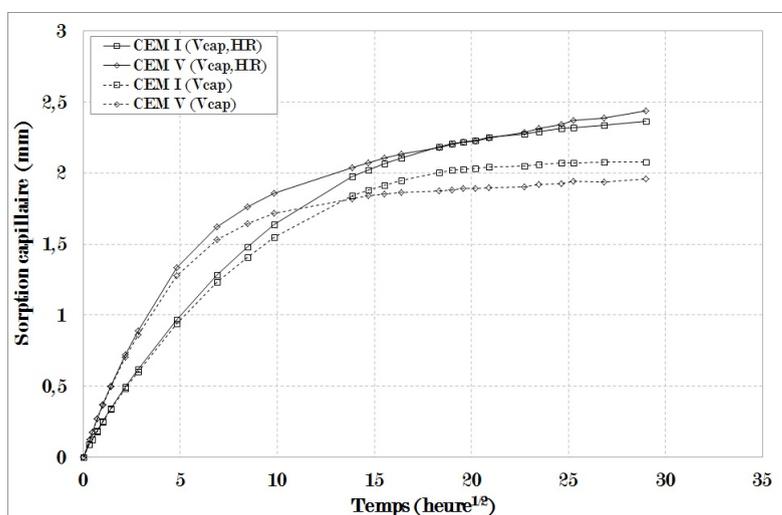


FIGURE IV.10 – Sorption capillaire des bétons CEM I et CEM V

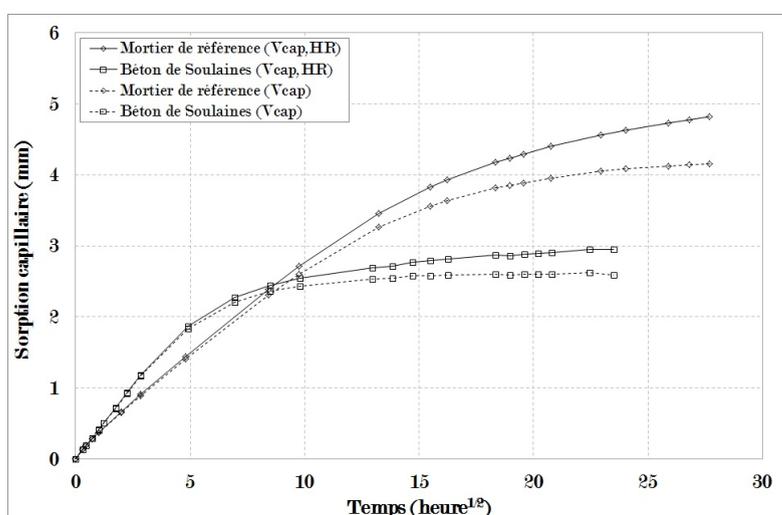


FIGURE IV.11 – Sorption capillaire du mortier de référence et du béton de Soulaines

moitié de la pression capillaire minimale (700Pa pour le pore le plus grand, voir Figure IV.5) pour les deux bétons CEM I et CEM V. Donc, la gravité n'est pas la cause du phénomène ci-dessus. (2) Il est possible que l'entrée d'eau dans les matériaux cimentaires secs relance l'hydratation du ciment résiduel. Mais *Hanzic et al. (2010)* montrent que l'hydratation n'est pas la cause principale. (3) Selon le modèle de tubes parallèles (section I.2.2) et l'équation de Lucas-Washburn, les grands pores seront complètement remplis plus tôt que les petits pores. Lorsque les grands pores sont remplis, la pression capillaire dans ces tubes disparaît. Donc, la pression capillaire totale dans l'échantillon diminue et alors l'imbibition d'eau ralentit. Avec une équation modifiée de Lucas-Washburn (Annexe B) et les résultats de la porosimétrie de mercure, on peut modéliser l'imbibition capillaire des

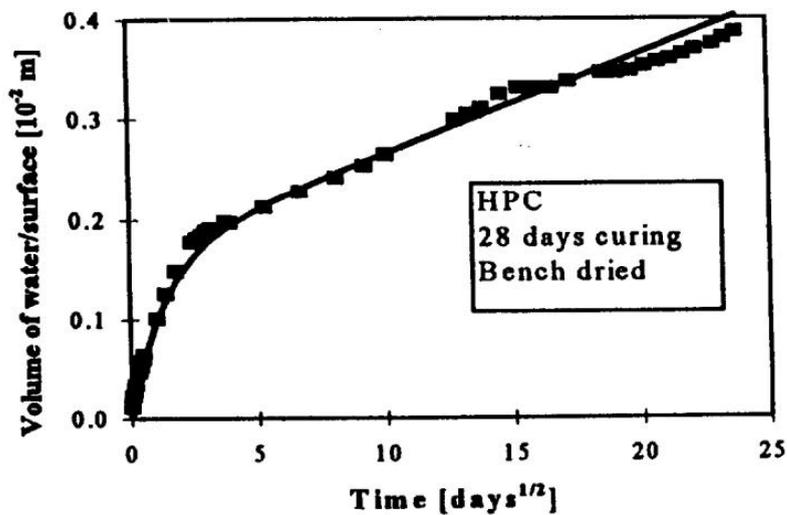


FIGURE IV.12 – Sorption capillaire d'un béton (*Martys et Ferraris (1997)*)

bétons CEM I et CEM V en considérant l'effet de tortuosité de pores, voir Figure IV.13.

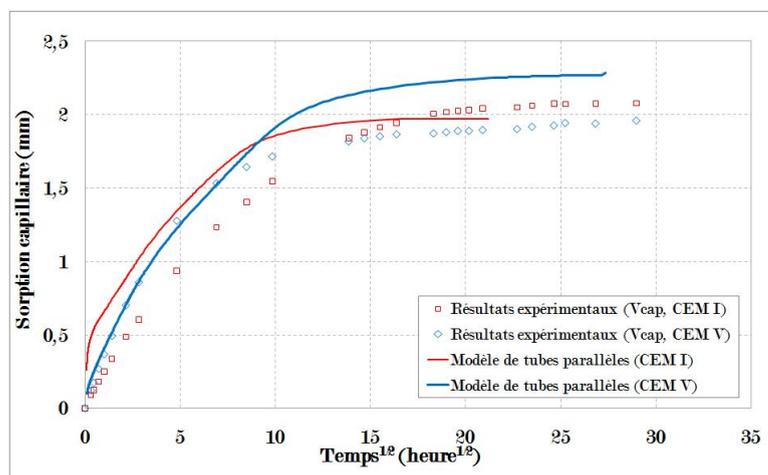


FIGURE IV.13 – Modélisation de l'imbibition capillaire, basée sur le modèle de tubes parallèles

Remarque : la modélisation est réalisée selon une équation modifiée de Lucas-Washburn en considérant l'effet de rondeur de la section de pores et l'effet de tortuosité de passages (Annexe B).

IV.5.3 Influence de l'imbibition capillaire sur la perméabilité relative au gaz

Pour le même niveau de saturation en eau, la perméabilité relative au gaz de l'échantillon pré-traité par l'imbibition capillaire est inférieure à celle de l'échantillon pré-traité par l'adsorption sous humidité relative, voir Figure IV.14. La perméabilité relative au gaz d'échantillon pré-traité par l'imbibition capillaire chute plus vite lorsque la saturation augmente. Elle devient inférieure à 5% pour les deux bétons CEM I et CEM V dès que la saturation est supérieure à 0,3.

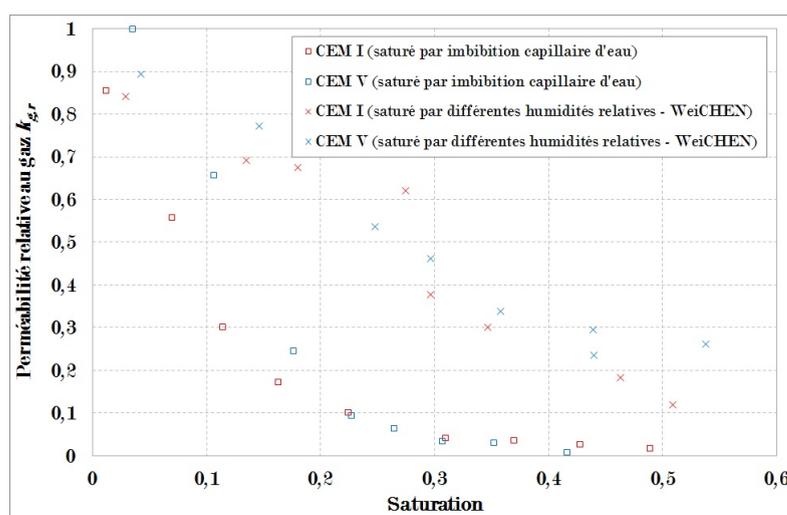


FIGURE IV.14 – Effet de l'imbibition capillaire sur la perméabilité relative au gaz des bétons CEM I et CEM V

Pour le cas de l'imbibition capillaire, l'écoulement d'imbibition forme un front horizontal, voir Figures I.18 et I.19. En d'autres termes, une barrière d'eau se forme en bas de l'échantillon, ce qui empêche le passage de gaz. Au début de l'imbibition capillaire (lorsque la saturation est inférieure à 0,3), la pression d'injection (2MPa) permet au gaz de traverser cette barrière au moins dans les pores les plus grands. Mais lorsque l'imbibition capillaire progresse, cette barrière devient de plus en plus large. Le gaz ne peut plus la traverser et la perméabilité relative devient très faible. Pour le cas de l'adsorption sous humidité relative, la distribution d'eau dans l'échantillon est homogène si on suppose que la distribution de pores est macroscopiquement homogène, voir Figure I.7. Il n'y a pas de barrière horizontale et des passages peuvent encore être trouvés lorsque la saturation arrive à 0,3. *Rucker-Gramm et Beddoe (2010)* étudient l'imbibition capillaire de l'échantillon pré-traité par sorption sous différentes humidités relatives. Ils trouvent différents coefficients d'imbibition capillaire selon l'humidité relative de traitement. Ceci indique aussi que la sorption sous humidité relative et l'imbibition capillaire forment des distributions d'eau différentes pour les matériaux cimentaires.

IV.6 Conclusion

L'imbibition capillaire d'eau est bien influencée par la pression d'injection pour les deux bétons CEM I et CEM V. Car la pression d'injection peut effectivement accélérer l'entrée d'eau dans des pores dont la pression capillaire est proche de la pression d'injection. 3 cycles de séchage-resaturation entraînent probablement la microfissuration pour le béton CEM I.

La courbe de sorption capillaire dévie de l'équation [IV.2](#) lorsque l'imbibition capillaire dure longtemps (un mois dans notre essais). Le modèle de tubes parallèles peut généralement modéliser le processus d'imbibition capillaire en considérant l'effet de forme de section de pores et l'effet de tortuosité des passages.

Pour les bétons CEM I et CEM V, la perméabilité relative au gaz de l'échantillon pré-traité par l'imbibition capillaire chute plus rapidement que celle de l'échantillon pré-traité par adsorption sous humidités relatives, car l'imbibition capillaire forme une barrière horizontale d'eau en bas de l'échantillon tandis que la distribution d'eau dans le cas de l'adsorption sous humidités relatives est homogène. Au même niveau de saturation, la barrière horizontale empêche plus de passages de gaz.

Chapitre V

Simulation numérique de transfert d'eau dans le béton

Introduction

Dans ce chapitre, deux types de transfert d'eau - la sorption sous humidité relative et l'imbibition capillaire - sont numériquement simulés.

La première partie détaille les équations constitutives. Les équations de conservation de la masse sont présentées et discutées. Un double-modèle de rétention est proposé. Les expressions explicites de la perméabilité relative sont déduites, basées sur les résultats expérimentaux de l'isotherme de sorption.

Les essais expérimentaux qu'on simule dans ce chapitre sont ensuite présentés : l'essai de désorption sous humidité relative de 50%, l'essai d'adsorption sous humidité relative de 100% et l'essai d'imbibition capillaire sans ou sous pression d'injection.

En troisième partie, la sorption sous humidité relative et l'imbibition capillaire sans pression d'injection sont simulées selon le modèle de diffusion de la saturation en eau.

Enfin, en utilisant le double-modèle de rétention et les expressions de la perméabilité relative à l'eau qu'on a déduites dans la première partie, le transfert d'eau est simulé par la méthode des éléments finis.

V.1 Equations constitutives

V.1.1 Equation de conservation de la masse

a) Sorption sous humidité relative

La sorption sous humidité relative dans les matériaux cimentaires est pilotée par les forces de Van de Waals et la condensation capillaire (section I.2.2). Par ailleurs, il est évident que la vapeur dans les pores possède un gradient de concentration qui mobilise la diffusion. Donc, la sorption est un phénomène couplé amené par les forces de Van de Waals, la condensation capillaire et la diffusion (on néglige l'effet de gravité). Il est cependant difficile de décrire le détail des 3 facteurs dans une équation constitutive.

En pratique, il existe 2 types d'équation de conservation de la masse pour décrire le processus de sorption sous humidité relative. Le premier type est donné par un modèle de diffusion de la teneur d'eau [*Philip et Vries (1957)*, *Goual et al. (2006)*]

$$\frac{\partial \theta_w}{\partial t} = \text{div}(D \nabla \theta_w) \quad (\text{V.1})$$

où θ_w est la teneur en eau, D est le coefficient de diffusion.

On définit la saturation en eau S_w par

$$S_w = \frac{\theta_w - \theta_r}{\theta_s - \theta_r} \quad (\text{V.2})$$

où θ_r est la teneur résiduelle, θ_s est la teneur maximale. θ_r et θ_s sont deux constantes.

Ainsi l'équation V.1 se transforme en

$$\frac{\partial S_w}{\partial t} = \text{div}(D \nabla S_w) \quad (\text{V.3})$$

Le second type est donné par un modèle de diffusion de l'humidité relative [*Kim et Lee (1999)*, *Li et al. (2009)*]

$$\frac{\partial HR}{\partial t} = \text{div}(D_{HR} \nabla HR) \quad (\text{V.4})$$

où HR est l'humidité relative intérieure dans le milieu poreux, D_{HR} est le coefficient de diffusion de l'humidité relative.

b) Imbibition capillaire

L'imbibition capillaire est essentiellement l'écoulement non-saturé sous gradient de pression principalement dû à la capillarité. L'équation de Richards est usuellement appliquée pour décrire l'écoulement non-saturé dans un milieu poreux [*Richards (1931)*,

Ngnepieda et al. (2002), Kumar (2002)]

$$\frac{\partial \theta_w}{\partial t} = \text{div}(K(\nabla h + F^m)) \quad (\text{V.5})$$

où K est la conductivité hydraulique, h est la pression hydraulique, F^m est le vecteur de pesanteur (il est égal à -1 lorsqu'on considère la direction verticale et à 0 pour la direction horizontale).

Avec l'équation V.2, on peut récrire l'équation V.5 par

$$\frac{\partial S_w}{\partial t} = \frac{1}{\varphi} \text{div}\left(\frac{k_{w,i} k_{w,r}}{\mu_w} (\nabla p_w + \rho_w g F^m)\right) \quad (\text{V.6})$$

où $\varphi = \theta_s - \theta_r$ est la porosité apparente en eau (dans ce cas la teneur en eau est définie par le ratio du volume d'eau sur le volume de l'échantillon), $k_{w,i}$ est la perméabilité saturée à l'eau, $k_{w,r}$ est la perméabilité relative à l'eau, μ_w est la viscosité d'eau, ρ_w est la masse volumique d'eau, g est l'accélération de pesanteur, $p_w = h \rho_w g$ est la pression d'eau et $p_w = p_g - p_c$ dans le cas non-saturé, p_g est la pression de gaz et p_c est la pression capillaire.

c) Discussion

Si on néglige l'effet de gravité ($F^m = 0$) dans l'équation V.6 et qu'on suppose que

$$D = \frac{1}{\varphi} \frac{k_{w,i} k_{w,r}}{\mu_w} \frac{\partial p_w}{\partial S_w} \quad (\text{V.7})$$

l'équation V.6 aura la même forme que l'équation V.3. Donc, il est possible de simuler la sorption sous humidité relative et l'imbibition capillaire avec la même forme d'équation.

Il y a 3 variables inconnues dans l'équation V.6 : la saturation en eau S_w , la perméabilité relative à l'eau $k_{w,r}$ et la pression capillaire p_c (la perméabilité saturée à l'eau $k_{w,i}$ et la porosité apparente φ sont constantes et elles sont déterminées par essais directs ; la viscosité μ_w est égale à $1,0 \times 10^{-3} Pa \cdot s$). Donc, pour résoudre l'équation V.6, il faut 2 équations supplémentaires sur les relations entre ces 3 variables. Par ailleurs, des conditions aux limites des essais expérimentaux sont définies par l'humidité relative HR . Les modèles pour décrire les relations entre les quatre variables - S_w , $k_{w,r}$, p_c et HR - sont ensuite présentés.

V.1.2 Equation de Kelvin-Laplace

L'équation de Kelvin-Laplace décrit la relation entre la pression capillaire p_c et l'humidité relative HR .

L'humidité relative de l'air au-dessus d'un ménisque dans un pore capillaire est donnée par l'équation de Kelvin [*Thomson (1871)*, cité par *Galvin (2005)*]

$$\ln(HR) = -\frac{V_m}{RT} \frac{2\gamma \cos\theta}{r} \quad (\text{V.8})$$

où V_m est le volume molaire de l'eau liquide, R est la constante de gaz parfait, T est la température, γ est la tension superficielle à l'interface entre l'air et l'eau liquide, θ est l'angle de contact, r est le rayon du pore capillaire. En effet, pour le milieu poreux, on suppose que cette équation décrit la relation entre l'humidité relative intérieure et le rayon maximal des pores qui sont remplis par l'eau sous cette humidité relative.

Avec l'équation au-dessus et l'équation de Young-Laplace (équation I.10), la relation entre la pression capillaire p_c et l'humidité relative HR est donnée par

$$p_c = -\frac{RT}{V_m} \ln(HR) \quad (\text{V.9})$$

V.1.3 Modèle de rétention

Le modèle de rétention donne la relation entre la pression capillaire p_c et la saturation en eau S_w . *Chen et al. (1999)* résument les modèles de rétention. Un des modèles les plus connus est le modèle de van Genuchten [*van Genuchten (1980)*]

$$S_w = \left(1 + \left(\frac{p_c}{p_r}\right)^n\right)^{-m} \quad (\text{V.10})$$

où $m = 1 - 1/n$ et p_r sont deux paramètres qui se rapportent à la distribution de taille des pores du milieu poreux.

L'isotherme de sorption (relation entre la saturation en eau et l'humidité relative) peut être déterminée par le modèle de rétention et l'équation de Kelvin. Mais ce modèle va dévier du résultat expérimental pour le béton de Soulaines et pour le mortier de référence, voir Section II.4.3. Pour l'isotherme du béton CEM I et du béton CEM V (données expérimentales de *Chen et al. (2011)*), on peut obtenir une bonne concordance entre le modèle de van Genuchten et le résultat expérimental lorsque la saturation est inférieure à 0,7. Cependant dans ce cas ce modèle ne peut pas bien modéliser le résultat expérimental lorsque la saturation en eau s'approche de 1, voir Figures V.1 et V.2. Par ailleurs, *Feyen et al. (1998)* indiquent aussi que le modèle de van Genuchten ne fonctionne pas bien lorsque la saturation est importante.

Donc, *Gerke et van Genuchten (1993)* proposent une théorie de double-porosité pour améliorer le modèle de rétention. On suppose que dans le milieu poreux cohabitent deux systèmes de pores : un système de pores plus imperméables dans la matrice et un système de macropores ou fractures plus perméables. *Durner (1994)* [cité par *Carlier et al. (2007)*]

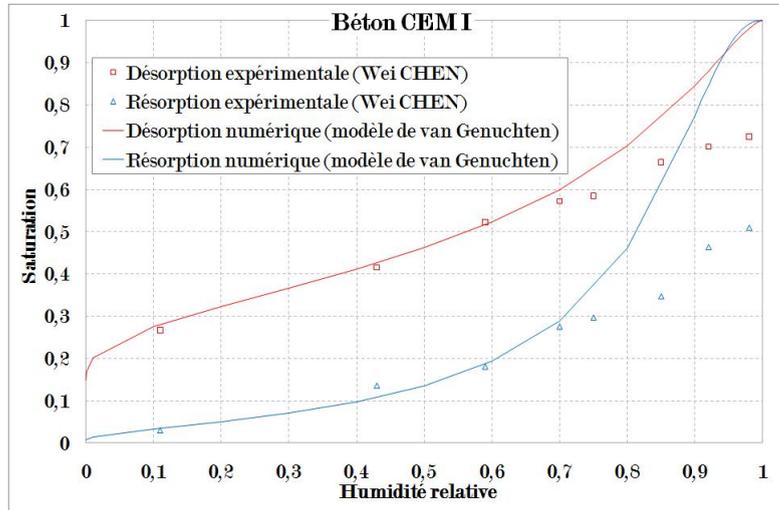


FIGURE V.1 – Isotherme de sorption du béton CEM I et le modèle de van Genuchten (Les valeurs des paramètres du modèle de van Genuchten sont présentées dans le tableau V.1)

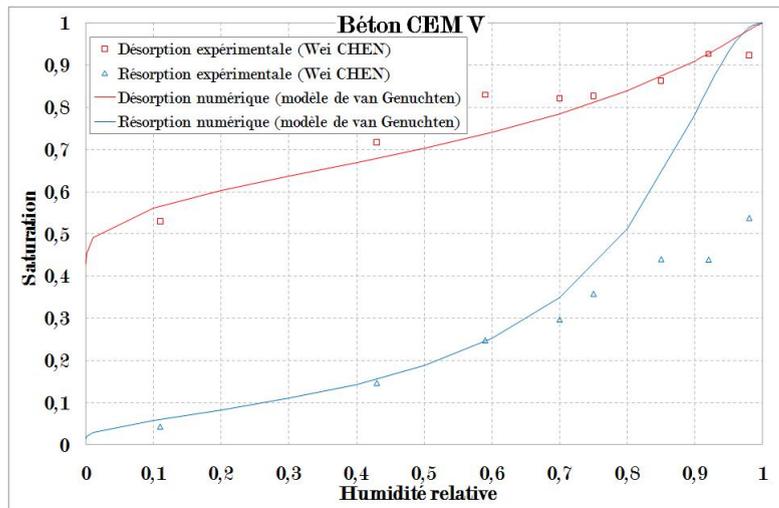


FIGURE V.2 – Isotherme de sorption du béton CEM V et le modèle de van Genuchten (Les valeurs des paramètres du modèle de van Genuchten sont présentées dans le tableau V.1)

présente un modèle de rétention contenant 2 systèmes de pores par

$$S = \omega_1 \left(1 + \left(\frac{p_c}{p_1} \right)^{n_1} \right)^{-m_1} + \omega_2 \left(1 + \left(\frac{p_c}{p_2} \right)^{n_2} \right)^{-m_2} \quad (\text{V.11})$$

où ω_1 est la fraction volumique du premier système de pores, $\omega_2 = 1 - \omega_1$ est la fraction volumique du second système de pores, $m_1 = 1 - 1/n_1$, p_1 , $m_2 = 1 - 1/n_2$ et p_2 sont les paramètres qui sont respectivement relatifs à la distribution de taille des pores du premier

TABLE V.1 – Valeurs des paramètres du modèle de van Genuchten

Matériaux		n	p_r (Pa)
CEM I	Désorption	1,45	$1,8 \times 10^7$
	Résorption	2,20	$1,8 \times 10^7$
CEM V	Désorption	1,20	$1,8 \times 10^7$
	Résorption	2,00	$1,8 \times 10^7$

système de pores et à celle du second système. Donc, dans ce modèle il y a 5 paramètres indépendants - ω_1 , m_1 , m_2 , p_1 , p_2 .

Pour faciliter la simulation numérique, nous proposons un double-modèle de rétention qui contient 3 paramètres indépendants

$$S_w = \omega_1 \left(1 - e^{-\frac{p_1}{p_c}}\right) + \omega_2 \left(1 - e^{-\frac{p_2}{p_c}}\right) \quad (\text{V.12})$$

où ω_1 et $\omega_2 = 1 - \omega_1$ sont respectivement les fractions volumiques du premier système et du second système, p_1 et p_2 se rapportent respectivement au rayon moyen de chaque système.

En effet, ce double modèle de rétention vient d'une supposition bimodale de distribution de taille de pores [*Koishi et al. (1999)*]. Avec l'équation de Young-Laplace et l'équation V.12, on peut obtenir une fonction de distribution de taille de pores par

$$F_{cum}(r) = \omega_1 \left(1 - e^{-\frac{p_1}{2\gamma}r}\right) + \omega_2 \left(1 - e^{-\frac{p_2}{2\gamma}r}\right) \quad (\text{V.13})$$

où $F_{cum}(r)$ est la fraction volumique cumulative des pores dont le rayon est égal ou inférieur à r , γ est la tension superficielle à l'interface entre l'air et l'eau liquide. Il apparaît dans l'équation ci-dessus que la distribution de taille de pores de chaque système peut être exprimée par une fonction exponentielle, $\left(1 - e^{-\frac{p_1}{2\gamma}r}\right)$ pour le premier système et $\left(1 - e^{-\frac{p_2}{2\gamma}r}\right)$ pour le second système. Le rayon moyen de chaque système est respectivement donné par

Pour le premier système de pores

$$r_{m,1} = \frac{2\gamma}{p_1} \quad (\text{V.14})$$

Pour le deuxième système de pores

$$r_{m,2} = \frac{2\gamma}{p_2} \quad (\text{V.15})$$

où γ est la tension superficielle à l'interface entre l'air et l'eau liquide.

En comparant avec le modèle de van Genuchten, ce double-modèle ajoute un paramètre et il permet de bien modéliser le résultat expérimental, voir Figures V.3 et V.4.

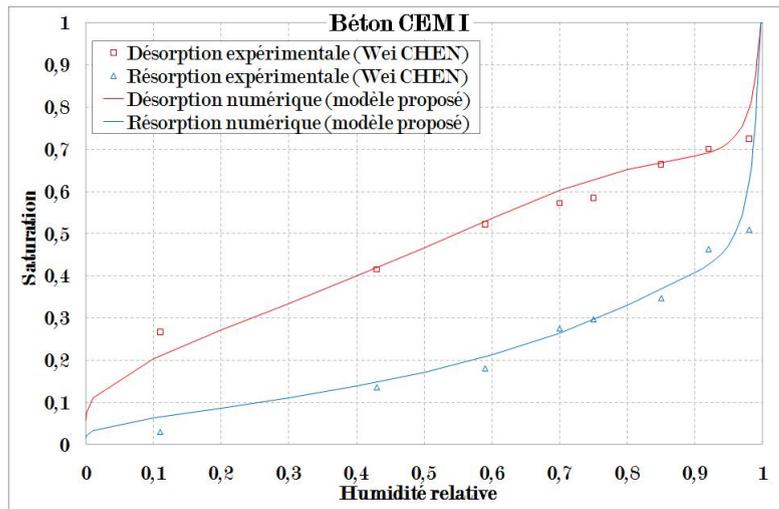


FIGURE V.3 – Isotherme de sorption du béton CEM I et le double modèle de rétention

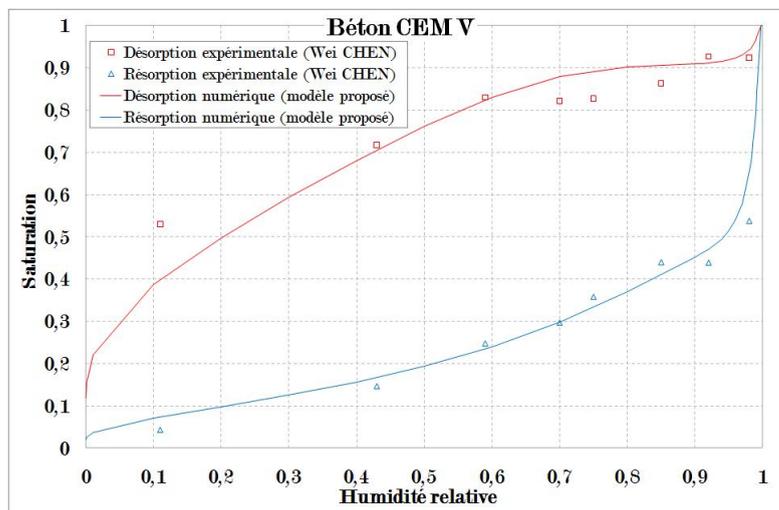


FIGURE V.4 – Isotherme de sorption du béton CEM V et le double modèle de rétention

Les valeurs des paramètres pour les bétons CEM I et CEM V sont données dans le tableau V.2. Les valeurs de ω_1 et p_1 sont d'abord déterminées pour avoir une bonne simulation lorsque la saturation s'approche de 1 et puis, la valeur p_2 est déterminée pour parfaire la simulation aux basses humidités relatives. Enfin, la même valeur de p_1 est appliquée et cette valeur correspond à une distribution de taille de pores qui donne un rayon moyen égal à 99nm. Avec ces valeurs des paramètres et l'équation V.13, on peut estimer

la distribution de taille de pores, voir Figure V.5. La distribution venue de l'isotherme de désorption dévie largement du résultat du test d'intrusion de mercure (MIP) tandis que la distribution venue de l'isotherme d'adsorption est plus proche du résultat de MIP. On pense que la différence entre la distribution déterminée par l'isotherme de désorption et celle déterminée par l'isotherme d'adsorption est produite par l'effet de "inkbottle" (Figure I.13) et l'effet de cinétiques différentes de l'entrée et de la sortie d'eau des interpores entre les cristaux de C-S-H (Figure V.6).

TABLE V.2 – Valeurs des paramètres du double-modèle de rétention

Matériaux		ω_1	p_1 (Pa)	p_2 (Pa)	$r_{m,1}$ (nm)	$r_{m,2}$ (nm)
CEM I	Désorption	0,35	$1,46 \times 10^6$	$1,16 \times 10^8$	99	1,3
	Résorption	0,65	$1,46 \times 10^6$	$5,82 \times 10^7$	99	2,5
CEM V	Désorption	0,10	$1,46 \times 10^6$	$1,75 \times 10^8$	99	0,83
	Résorption	0,60	$1,46 \times 10^6$	$5,82 \times 10^7$	99	2,5

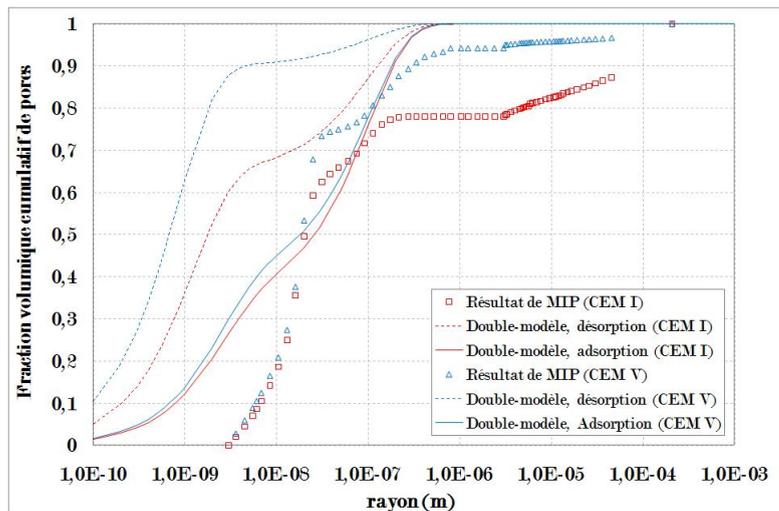


FIGURE V.5 – Distribution de taille de pores du béton CEM I et du béton CEM V

Les pores dont le rayon est supérieur à 500nm ne se présentent pas dans la courbe de distribution déterminée par l'isotherme de sorption, voir Figure V.5. Ceci indique que ces grands pores ne jouent pas de rôle important dans la sorption sous humidité relative pour les bétons CEM I et CEM V.

Les pores dont le rayon est inférieur à 3nm occupent une grande partie de la porosité dans la courbe de distribution déterminée par l'isotherme de sorption tandis qu'ils ne n'apparaissent pas dans le résultat de la porosimétrie de mercure (MIP), voir Figure V.5. On pense généralement que les interpores entre les cristaux C-S-H sont justement ces petits

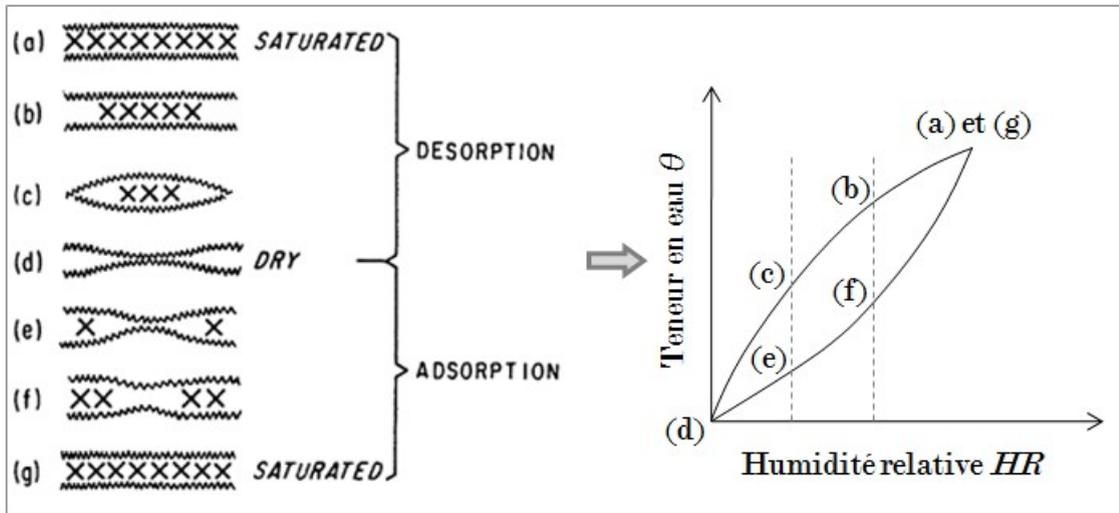


FIGURE V.6 – Modèle de l'entrée et de la sortie d'eau des interpores entre les cristaux de C-S-H [*Feldman (1968), Feldman et Sereda (1970)*]

pores. *Powers (1958)* pense que les interpores ont un diamètre de 1,8 nm et ils donnent une porosité de 0,28 dans le produit de hydratation ; *Feldman et Sereda (1970)* pensent que le diamètre des interpores est entre 0,5 et 2 nm mais le test de MIP ne peut pas mesurer ces pores. Ces pores commencent à perdre l'eau lorsque l'humidité relative est inférieure à 0,1 et cette perte d'eau peut fermer ces pores et bloquer de l'eau dans ces pores, voir Figure V.6. Pour continuer à sécher cette eau, il faut une humidité relative plus basse qui désigne 1 rayon plus petit selon l'équation de Kelvin. Par contre, pour remplir ces pores dans le processus d'adsorption, il faut une humidité relative plus haute qui désigne 1 rayon plus grand. Donc, la fraction de petits pores déterminée par l'isotherme de désorption est plus grande que celle déterminée par l'isotherme d'adsorption, voir Figure V.5.

V.1.4 Modèle de perméabilité relative

a) Hypothèses et équations

La loi de Poiseuille décrit l'écoulement laminaire d'eau dans un long tube cylindrique par

$$\frac{Q_r}{A_r} = \frac{1}{\mu_w} \frac{r^2}{8} \nabla p_w \quad (\text{V.16})$$

où Q_r est le débit de l'écoulement, A_r est la section du tube, μ_w est la viscosité d'eau, r est le rayon du tube, ∇p_w est le gradient de pression d'eau.

On suppose que la porosité dans le milieu poreux se compose de tubes cylindriques parallèles dont les rayons se divisent en $r_1 < r_2 < \dots < r_N$ et que les nombres de tubes de chaque rayon sont respectivement n_1, n_2, \dots, n_N [*Dana et Skoczylas (2002)*]. Le débit total

de l'écoulement saturé dans ce milieu poreux est la somme de débits de tous tubes

$$Q = \sum_{i=1}^N n_i A_{r_i} \frac{1}{\mu_w} \frac{r_i^2}{8} \nabla p_w \quad (\text{V.17})$$

où Q est le débit total, A_{r_i} est la section du tube dont le rayon est égal à r_i .

Donc, selon la loi de Darcy, la perméabilité saturée à l'eau $k_{w,i}$ du milieu poreux est donnée par

$$k_{w,i} = \frac{\sum_{i=1}^N n_i A_{r_i} \frac{r_i^2}{8}}{A} \quad (\text{V.18})$$

où A est la section du milieu poreux.

Pour l'écoulement non-saturé, on suppose que seuls les pores remplis par l'eau contribuent à la perméabilité à l'eau et que les pores plus petits sont remplis en premier. La perméabilité effective $k_{w,j}$ à la saturation $S_{w,j}$ est donnée par

$$k_{w,j} = \frac{\sum_{i=1}^j n_i A_{r_i} \frac{r_i^2}{8}}{A} \quad (\text{V.19})$$

$$S_{w,j} = \frac{\sum_{i=1}^j n_i A_{r_i}}{\sum_{i=1}^N n_i A_{r_i}} \quad (\text{V.20})$$

La perméabilité relative à l'eau est donnée par le rapport entre la perméabilité effective (équation V.19) et la perméabilité saturée (équation V.18)

$$k_{w,r} = \frac{\sum_{i=1}^j n_i A_{r_i} \frac{r_i^2}{8}}{\sum_{i=1}^N n_i A_{r_i} \frac{r_i^2}{8}} \quad (\text{V.21})$$

L'équation ci-dessus peut se transformer en

$$k_{w,r} = \frac{\int_0^{S_{w,j}} r^2 dS_w}{\int_0^1 r^2 dS_w} \quad (\text{V.22})$$

Par ailleurs, on suppose généralement que seuls les pores remplis par l'air contribuent à la perméabilité au gaz et donc la perméabilité relative au gaz est donnée par

$$k_{g,r} = \frac{\int_{S_{w,j}}^1 r^2 dS_w}{\int_0^1 r^2 dS_w} \quad (\text{V.23})$$

Avec l'équation de Kelvin, les deux équations au-dessus se transforment en

$$k_{w,r} = \frac{\int_0^{S_{w,j}} \frac{dS_w}{p_c^2}}{\int_0^1 \frac{dS_w}{p_c^2}} \quad (\text{V.24})$$

$$k_{g,r} = \frac{\int_{S_{w,j}}^1 \frac{dS_w}{p_c^2}}{\int_0^1 \frac{dS_w}{p_c^2}} \quad (\text{V.25})$$

En effet, les deux équations au-dessus sont le modèle de Purcell [*Purcell (1949)*, *Li et Home (2002)*]. Par rapport au modèle de Purcell, le modèle de Burdine ajoute un terme de tortuosité [*Burdine (1953)*, *Chen et al. (1999)*] et la perméabilité relative est donnée par

$$k_{w,r} = S_{w,j}^2 \frac{\int_0^{S_{w,j}} \frac{dS_w}{p_c^2}}{\int_0^1 \frac{dS_w}{p_c^2}} \quad (\text{V.26})$$

$$k_{g,r} = (1 - S_{w,j})^2 \frac{\int_{S_{w,j}}^1 \frac{dS_w}{p_c^2}}{\int_0^1 \frac{dS_w}{p_c^2}} \quad (\text{V.27})$$

Dans le modèle de Mualem, on modifie la forme de l'intégration en supposant que la longueur de pore interconnecté est proportionnel à son rayon [*Mualem (1976)*, *Chen et al. (1999)*]

$$k_{w,r} = S_{w,j}^{1/2} \left(\frac{\int_0^{S_{w,j}} \frac{dS}{p_c}}{\int_0^1 \frac{dS_w}{p_c}} \right)^2 \quad (\text{V.28})$$

$$k_{g,r} = (1 - S_{w,j})^{1/2} \left(\frac{\int_{S_{w,j}}^1 \frac{dS}{p_c}}{\int_0^1 \frac{dS_w}{p_c}} \right)^2 \quad (\text{V.29})$$

Basées sur double-modèle de rétention qui est proposé dans cette thèse, les expressions explicites de la perméabilité relative à l'eau et au gaz peuvent être obtenues par

Modèle de Purcell + Double-modèle de rétention

$$k_{w,r} = 1 - \frac{1}{2} \frac{p_1^2 p_2^2}{\omega_1 p_2^2 + \omega_2 p_1^2} \left[\frac{\omega_1}{p_1^2} \left(\frac{p_1^2}{p_c^2} + 2 \frac{p_1}{p_c} + 2 \right) e^{-\frac{p_1}{p_c}} + \frac{\omega_2}{p_2^2} \left(\frac{p_2^2}{p_c^2} + 2 \frac{p_2}{p_c} + 2 \right) e^{-\frac{p_2}{p_c}} \right] \quad (\text{V.30})$$

$$k_{g,r} = \frac{p_1^2 p_2^2}{\omega_1 p_2^2 + \omega_2 p_1^2} \left[\frac{\omega_1}{p_1} e^{-\frac{p_1}{p_c}} \left(\frac{1}{p_c} + \frac{1}{p_1} \right) + \frac{\omega_2}{p_2} e^{-\frac{p_2}{p_c}} \left(\frac{1}{p_c} + \frac{1}{p_2} \right) \right] \quad (\text{V.31})$$

Modèle de Burdine + Double-modèle de rétention

$$k_{w,r} = S_w^2 - \frac{S_w^2}{2} \frac{p_1^2 p_2^2}{\omega_1 p_2^2 + \omega_2 p_1^2} \left[\frac{\omega_1}{p_1^2} \left(\frac{p_1^2}{p_c^2} + 2 \frac{p_1}{p_c} + 2 \right) e^{-\frac{p_1}{p_c}} + \frac{\omega_2}{p_2^2} \left(\frac{p_2^2}{p_c^2} + 2 \frac{p_2}{p_c} + 2 \right) e^{-\frac{p_2}{p_c}} \right] \quad (\text{V.32})$$

$$k_{g,r} = (1 - S_w)^2 \frac{p_1^2 p_2^2}{\omega_1 p_2^2 + \omega_2 p_1^2} \left[\frac{\omega_1}{p_1} e^{-\frac{p_1}{p_c}} \left(\frac{1}{p_c} + \frac{1}{p_1} \right) + \frac{\omega_2}{p_2} e^{-\frac{p_2}{p_c}} \left(\frac{1}{p_c} + \frac{1}{p_2} \right) \right] \quad (\text{V.33})$$

Modèle de Mualem + Double-modèle de rétention

$$k_{w,r} = S_w^{1/2} \left\{ 1 - \frac{p_1 p_2}{\omega_1 p_2 + \omega_2 p_1} \left[\frac{\omega_1}{p_1} \left(\frac{p_1}{p_c} + 1 \right) e^{-\frac{p_1}{p_c}} + \frac{\omega_2}{p_2} \left(\frac{p_2}{p_c} + 1 \right) e^{-\frac{p_2}{p_c}} \right] \right\}^2 \quad (\text{V.34})$$

$$k_{g,r} = (1 - S_w)^{1/2} \left\{ \frac{p_1 p_2}{\omega_1 p_2 + \omega_2 p_1} \left[e^{-\frac{p_1}{p_c}} \left(\frac{\omega_1}{p_c} + \frac{\omega_1}{p_1} \right) + e^{-\frac{p_2}{p_c}} \left(\frac{\omega_2}{p_c} + \frac{\omega_2}{p_2} \right) \right] \right\}^2 \quad (\text{V.35})$$

b) Discussions

Pour les bétons CEM I et CEM V, les paramètres ω_1 , ω_2 , p_1 et p_2 sont déterminés par la modélisation des résultats expérimentaux de l'isotherme de sorption avec le double-modèle de rétention, voir Tableaux V.2. Avec ces valeurs des paramètres, la courbe de la perméabilité relative au gaz est donnée par les équations V.31, V.33 et V.35, voir Figures V.7 et V.8. On peut trouver que seul le modèle de Burdine peut donner une courbe concave qui est en concordance avec les résultats expérimentaux. Malgré l'hystérésis importante de l'isotherme de sorption, l'hystérésis de la perméabilité relative au gaz est très faible.

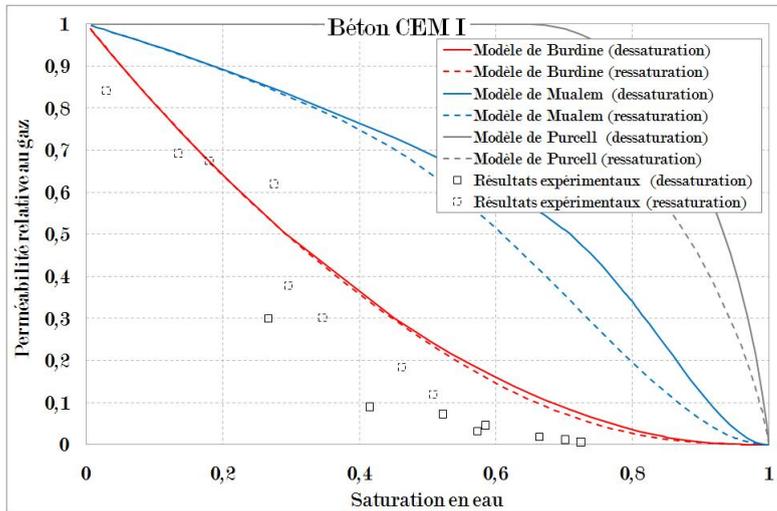


FIGURE V.7 – Perméabilité relative au gaz du béton CEM I

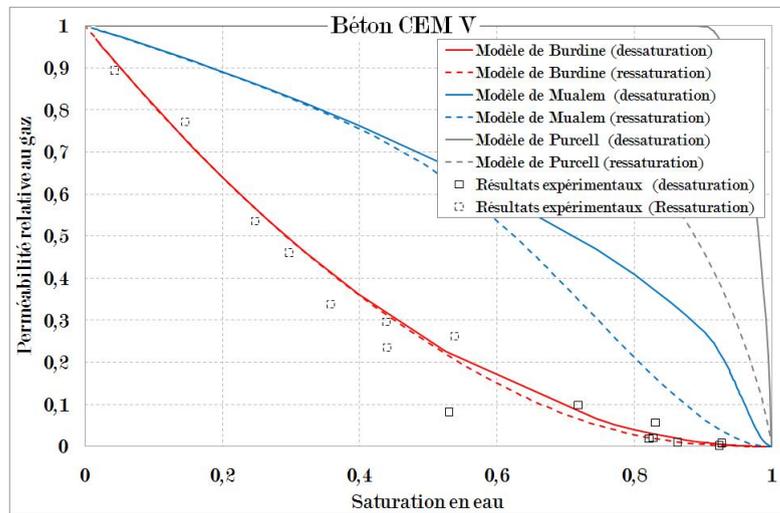


FIGURE V.8 – Perméabilité relative au gaz du béton CEM V

Les figures V.9 et V.10 présentent la perméabilité relative à l'eau. Elle est plus faible dans le processus de desaturation que celle dans le processus de resaturation et sa hystérésis est plus importante pour le béton CEM V que pour le béton CEM I. On pense que l'hystérésis de la perméabilité relative à l'eau est un reflet de l'hystérésis de l'isotherme de sorption. Par ailleurs, le modèle de Burdine donne toujours la perméabilité relative à l'eau la plus petite et la différence de la perméabilité relative des 3 modèles est plus faible dans le processus de desaturation que dans le processus de resaturation.

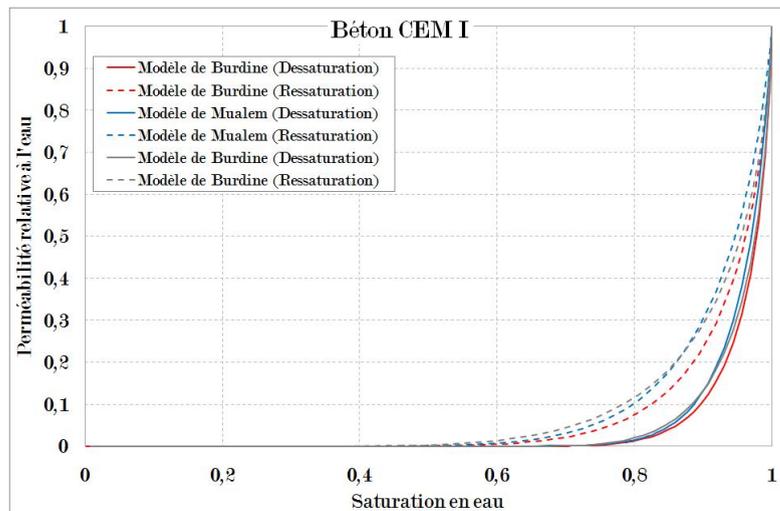


FIGURE V.9 – Perméabilité relative à l'eau du béton CEM I

Avec l'équation V.22, on peut estimer la perméabilité relative à l'eau avec les résultats de la porosimétrie de mercure (la distribution de taille des pores, voir Figure IV.5). La perméabilité relative à l'eau à base de la porosimétrie de mercure est proche de celle à

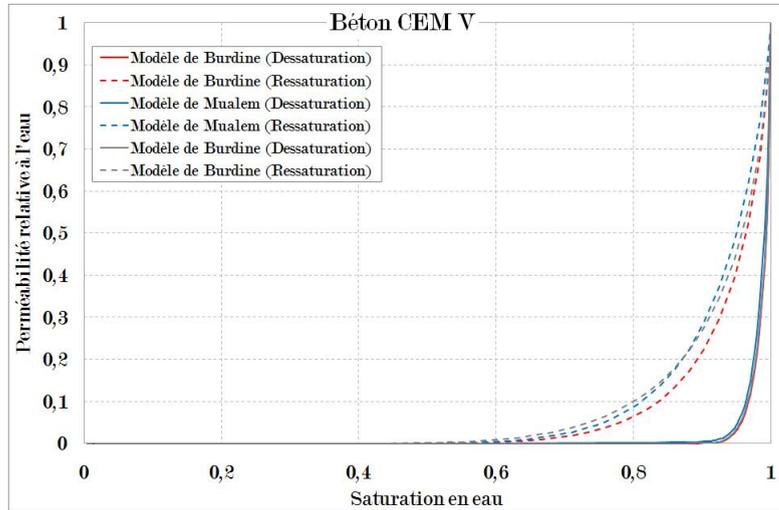


FIGURE V.10 – Perméabilité relative à l'eau du béton CEM V

base de l'isotherme de désorption (voir Figure V.11), car la forme de la distribution de taille de pores déterminée par l'isotherme de désorption est semblable à celle mesurée par la porosimétrie de mercure, voir Figure V.5.

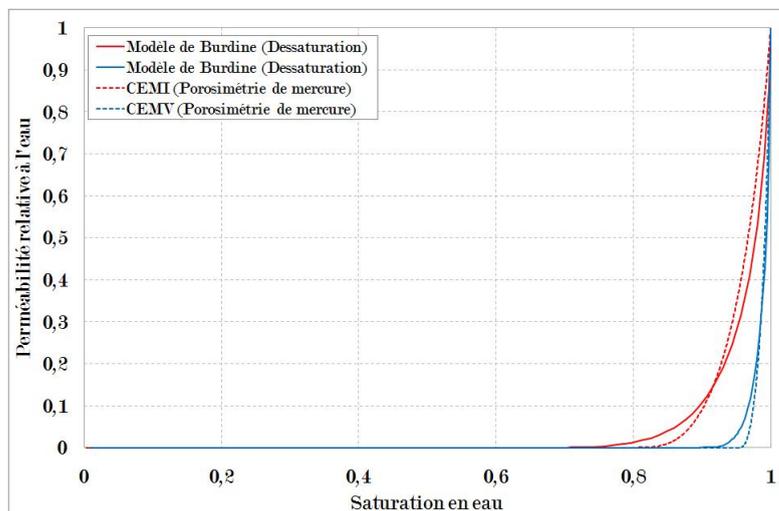


FIGURE V.11 – Comparaison des perméabilités relatives à l'eau respectivement déterminées par l'isotherme de désorption et par le test d'intrusion de mercure

On utilise, dans le développement de la perméabilité relative, un modèle de tubes parallèles. Par ailleurs, on suppose que les tubes plus fins sont remplis en premier lorsque la saturation augmente mais cette hypothèse est incompatible avec l'équation de Lucas-Washburn qui décrit l'écoulement d'imbibition capillaire. Ceci indique que la perméabilité relative obtenue n'est pas complètement conforme à la réalité de l'imbibition capillaire et

à la physique des phénomènes en présence. En revanche, la concordance de la perméabilité relative au gaz montre la pertinence de la modélisation.

V.2 Essais expérimentaux pour la simulation

V.2.1 Essai de désorption d'eau sous humidité relative de 50%

Cet essai vise à mettre en jeu le processus de désorption sous humidité relative. Un échantillon initialement saturé en eau est placé dans une enceinte où l'humidité relative et la température restent constantes, $HR=50\%$ et $T=20^\circ\text{C}$, voir Figure V.12. Donc l'échantillon est desaturé dans cette enceinte. Il est régulièrement pesé et la variation de la saturation est obtenue selon le changement de masse.

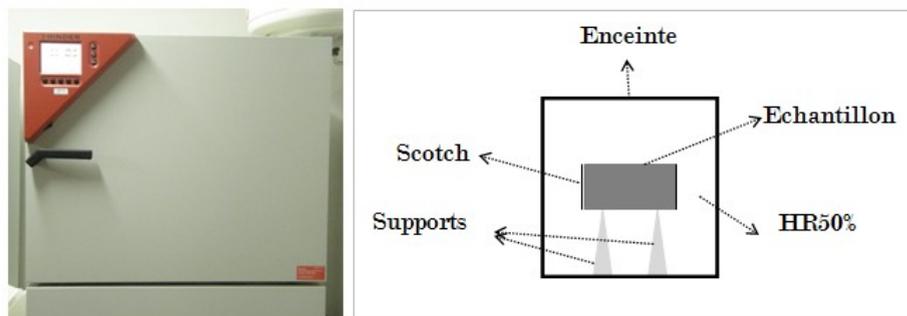


FIGURE V.12 – Essai de désorption d'eau sous humidité relative de 50%

V.2.2 Essai d'imbibition capillaire sans pression d'injection

Voir la section IV.2.

V.2.3 Essai d'adsorption d'eau sous humidité relative de 100%

Voir la section IV.2.

V.2.4 Essai d'imbibition capillaire sous pression d'injection

Voir la section IV.3.

V.3 Simulation selon la théorie de diffusion

Dans cette partie, l'équation V.3, basée sur la théorie de diffusion de la saturation en eau, est appliquée pour la simulation de l'essai de désorption sous humidité relative de

50% (HR50%), l'essai d'adsorption sous humidité relative de 100% (HR100%) et l'essai d'imbibition capillaire sans pression d'injection.

V.3.1 Modèle géométrique

Pour l'essai de désorption sous HR50% et l'essai d'adsorption sous HR100%, les conditions aux limites et les conditions initiales permettent d'utiliser un modèle symétrique, voir Figure V.13.

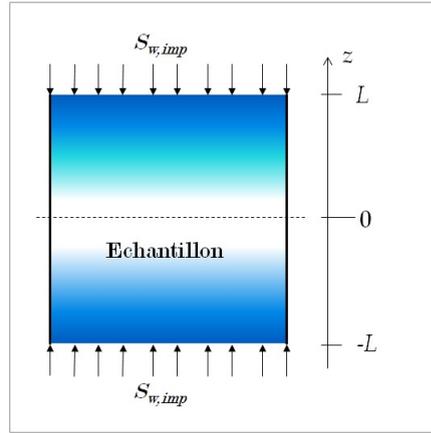


FIGURE V.13 – Modèle unidimensionnel et symétrique : L est la moitié de hauteur de l'échantillon

Pour l'essai d'imbibition capillaire sans pression d'injection, les conditions aux limites (hautes et basses) sont différentes. En bas, l'échantillon est en contact avec l'eau. Mais, en haut, c'est l'humidité relative de 100%. Les cinétiques des deux types de transfert d'eau sont différentes (section I.2). Donc, les conditions aux limites dans l'essai d'imbibition capillaire ne sont pas symétriques. Pour appliquer le modèle symétrique (Figure V.13) qui peut simplifier la simulation, on divise d'abord l'échantillon en deux parties : une partie imbibition (justement pour l'imbibition capillaire) et une partie adsorption sous humidité relative de 100% (justement pour l'adsorption), voir Figure V.14. On suppose que le volume d'eau entrant dans la partie adsorption (noté V_{HR}) et le volume d'eau entrant dans la partie imbibition capillaire (noté V_{cap}) sont donnés par

$$V_{HR} = \frac{V_{HR,HR}}{2} \quad (V.36)$$

$$V_{cap} = V_{cap,HR} - V_{HR} \quad (V.37)$$

où $V_{HR,HR}$ est le volume total d'eau entrant dans l'échantillon à l'essai d'adsorption sous humidité relative de 100%, $V_{cap,HR}$ est le volume total d'eau entrant dans l'échantillon à

l'essai d'imbibition capillaire.

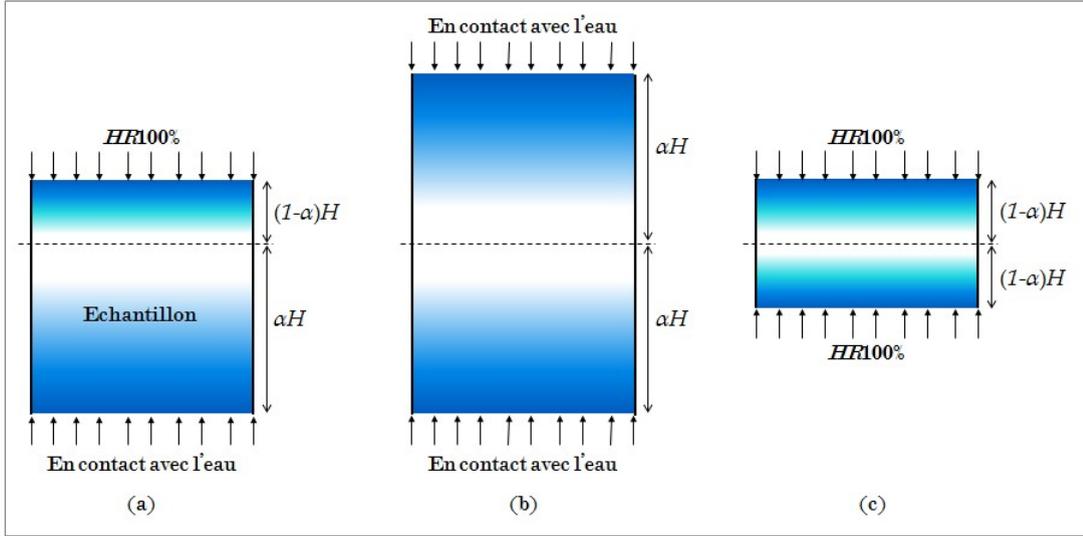


FIGURE V.14 – Transformation de l'essai d'imbibition capillaire sans pression d'injection en problèmes symétriques

On assemble respectivement deux mêmes parties imbibitions et deux mêmes parties adsorptions. Alors on obtient deux problèmes symétriques, voir Figure V.14. Pour déterminer la hauteur de chaque partie, on suppose que la partie imbibition est complètement saturée à la fin de l'essai. Alors la hauteur de la partie imbibition est donnée par

$$\alpha H = \frac{V_{cap}(t_{final})}{\varphi V_{ech}} H \quad (V.38)$$

où H est la hauteur de l'échantillon, αH est la hauteur de la partie imbibition capillaire, φ est la porosité de l'échantillon, V_{ech} est le volume de l'échantillon, $V_{cap}(t_{final})$ est le volume d'eau d'entrée dans la partie imbibition à la fin de l'essai. Pour le béton CEM I $\alpha=0,78$ et pour le béton CEM V $\alpha=0,53$.

Dans la simulation, on utilise la hauteur de chaque partie au lieu de la vraie hauteur de l'échantillon. Ceci indique que la saturation déterminée dans la simulation est la saturation de chaque partie au lieu de la vraie saturation de l'échantillon entier. Par exemple, une saturation égale à $S_{w,i}$ pour la partie imbibition désigne une saturation égale à $\alpha S_{w,i}$ pour l'échantillon entier tandis que une saturation de $S_{w,i}$ pour la partie adsorption donne une saturation $(1 - \alpha)S_{w,i}$ pour l'échantillon entier. En bref, la saturation dans la simulation n'est pas la saturation vraie de l'échantillon.

V.3.2 Hypothèses et equations

On suppose que la saturation en eau S_w dans le modèle unidimensionnel et symétrique (Figure V.13) est une fonction du temps t et de la coordonnée z

$$S_w = S_w(t, z) \quad (\text{V.39})$$

Donc, les conditions aux limites sont données par

$$S_w(t, L) = S_w(t, -L) = S_{w,imp} \quad (\text{V.40})$$

$$\left. \frac{\partial S_w}{\partial z} \right|_{z=0} = 0 \quad (\text{V.41})$$

où $S_{w,imp}$ est la saturation imposée sur deux extrémités de l'échantillon. L'humidité relative de 100% et le contact avec l'eau sont tous définis par $S_{w,imp} = 1$. La saturation imposée $S_{w,imp}$ pour l'essai de désorption sous humidité relative de 50% est déterminée par l'isotherme de désorption (Figures V.3 et V.4), voir Tableau V.3.

TABLE V.3 – Conditions aux limites de l'essai de désorption sous humidité relative de 50%

Matériaux	$S_{w,imp}$
Béton CEM I	0,468
Béton CEM V	0,762

La condition initiale est donnée par

$$S_w(0, z) = S_{w,ini} \quad (\text{V.42})$$

où $S_{w,ini}$ est la saturation initiale de l'échantillon. Pour l'essai de désorption sous HR50%, l'échantillon est initialement saturé. Donc la saturation initiale $S_{w,ini}$ est égale à 1. Pour les autres essais, l'échantillon est initialement sec et la saturation initiale $S_{w,ini}$ est égale à 0.

Si on suppose que le coefficient de diffusion D est constant, l'équation V.3 se transforme en

$$\frac{\partial S_w}{\partial t} = D \nabla^2 S_w \quad (\text{V.43})$$

On peut supposer que la saturation en eau S_w est exprimée par une série qui est une

solution générale de l'équation V.43 [*Crank (1975), Olchitzky (2002)*]

$$S_w(t, z) = \sum_{n=1}^{\infty} V_n \cos(\omega_n z + \phi_n) \exp(-D\omega_n^2 t) \quad (\text{V.44})$$

où V_n , ω_n et ϕ_n sont des constantes. Avec les conditions aux limites et la condition initiale (équations V.40, V.41 et V.42), on peut déterminer les valeurs de ces constantes et l'expression de la saturation S_w se récrit par

$$S_w(t, z) = S_{w,imp} + \sum_{n=1}^{\infty} 4 \frac{S_{w,ini} - S_{w,imp}}{(2n-1)\pi} \sin\left(\frac{(2n-1)\pi}{2} z\right) \cos\left(\frac{(2n-1)\pi}{2L} z\right) \exp\left(-D \frac{(2n-1)^2 \pi^2}{4L^2} t\right) \quad (\text{V.45})$$

La série dans l'équation ci-dessus converge très vite et les premiers 100 termes peuvent assurer la précision du calcul. Donc, si la valeur du coefficient de diffusion D est déterminée, on peut estimer l'évolution de la saturation en eau $S_w(t, z)$. Alors le volume d'eau entré V_{ent} dans l'échantillon au temps t peut être déterminé par

$$V_{ent}(t) = \int_{-L}^L (S_w(t, z) - S_{w,ini}) \varphi V_{ech} dz \quad (\text{V.46})$$

Dans les essais, le volume d'eau entré V_{ent} est mesuré. Donc, on peut déterminer la valeur du coefficient de diffusion D par la méthode des moindres carrés, basé sur le résultat expérimental du volume V_{ent} et sur les équations V.45 et V.46.

V.3.3 Résultats

Les figures V.15, V.16, V.17 et V.18 montrent les comparaisons entre les données numériques et les données expérimentales pendant une période de 5 semaines. On peut constater une bonne concordance générale.

Pour l'essai de désorption sous humidité relative de 50%, le résultat numérique tend à dévier du résultat expérimental lorsque la durée d'essai est supérieure à 5 semaines; pour la simulation de la partie imbibition dans l'essai d'imbibition capillaire, le résultat numérique monte plus vite que le résultat expérimental lorsque la saturation en eau est plus grande que 0,8. On pense que ces écarts peuvent venir de l'hypothèse D constant. Comme indiqué dans la section III.5.1, le coefficient de diffusion D des deux bétons CEM I et CEM V est actuellement variable en fonction de la teneur d'eau.

La tableau V.4 montre les valeurs du coefficient de diffusion D . Pour les bétons CEM I et CEM V, le coefficient D de la désorption est plus grand que celui de l'adsorption.

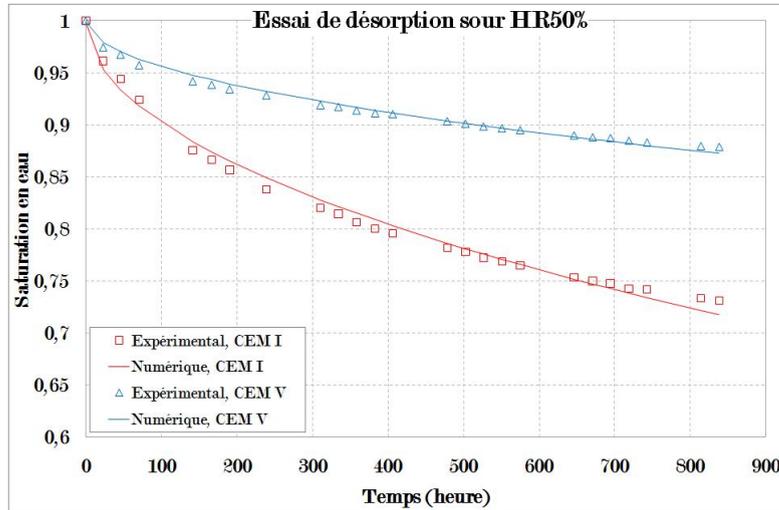


FIGURE V.15 – Simulation de l’essai de désorption sous humidité relative de 50%

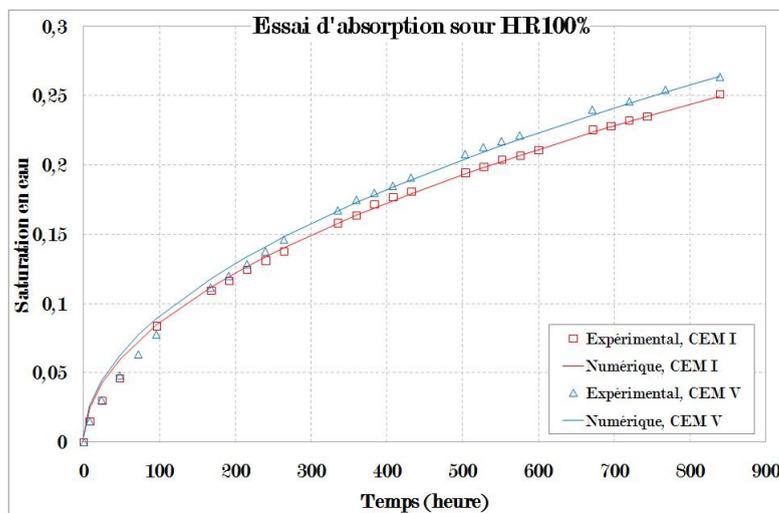


FIGURE V.16 – Simulation de l’essai d’adsorption sous humidité relative de 100%

Baroghel-Bouny (2007) simule la désorption et l’adsorption de matériaux cimentaires aussi à base de l’équation V.43, en supposant que le coefficient D reste constant pendant chaque petit intervalle d’humidité relative (par exemple, de 23% à 12% ou de 12% à 3%). *Baroghel-Bouny* (2007) présente la valeur du coefficient D de 2 bétons est entre $2,8 \times 10^{-14} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ et $2,8 \times 10^{-11} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$, voir Figure V.19. La valeur du coefficient D dans notre simulation se situe bien dans ce domaine. Par ailleurs, la Figure V.19 montre aussi la variabilité du coefficient D en fonction de la saturation en eau.

La transformation de l’imbibition capillaire asymétrique en deux problèmes symétriques (Figure V.14) permet de simuler l’essai d’imbibition capillaire, voir Figures V.17 et V.18. Mais la saturation dans la simulation des deux problèmes n’est pas la saturation

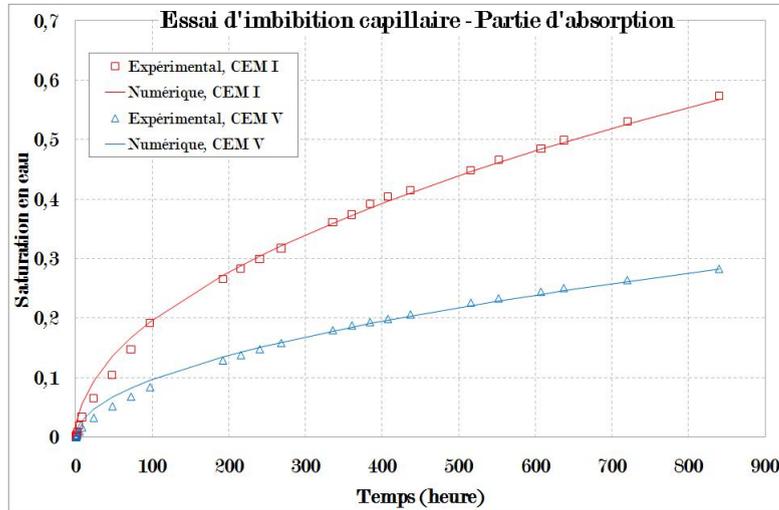


FIGURE V.17 – Simulation de la partie adsorption de l'essai d'imbibition capillaire sans pression d'injection

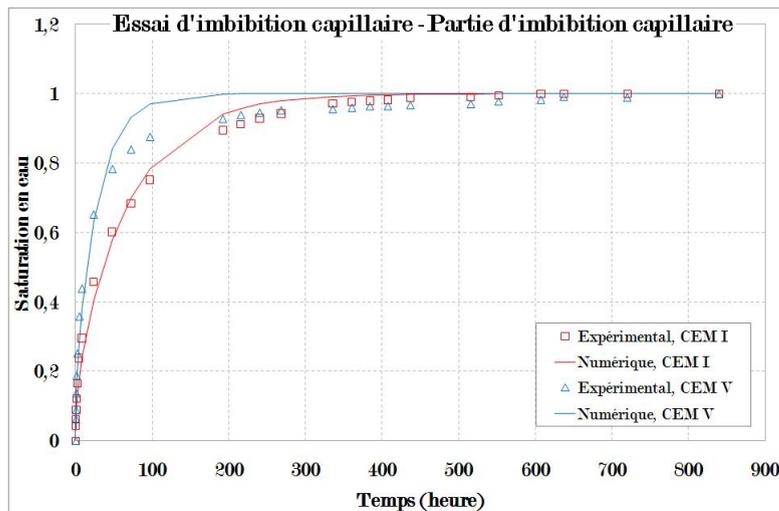


FIGURE V.18 – Simulation de la partie imbibition capillaire de l'essai d'imbibition capillaire sans pression d'injection

vraie de l'échantillon, voir Figure V.14. Ceci indique que le coefficient D dans la simulation de l'imbibition capillaire reflète justement la capacité de diffusion de la saturation apparente au lieu de la vraie saturation. Ceci peut expliquer pourquoi le coefficient de diffusion de la partie adsorption est beaucoup plus grand que celui de l'essai d'adsorption sous humidité relative de 100%.

Cependant la valeur du coefficient D de la partie adsorption est cent fois moins grand que celui de la partie imbibition capillaire, voir Tableau V.4. Ceci indique que l'adsorption sous humidité relative de 100% et l'imbibition capillaire en contact avec l'eau ont des

TABLE V.4 – Valeur du paramètre D déterminée par la méthode des moindres carrés

Matériaux	$D(\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1})$			
	Essai de désorption sous HR50%	Essai d'adsorption sous HR100%	Essai d'imbibition capillaire sans p_{inj}	
			Partie d'adsorption	Partie d'imbibition
Béton CEM I	$1,66 \times 10^{-11}$	$3,64 \times 10^{-12}$	$3,61 \times 10^{-10}$	$8,47 \times 10^{-8}$
Béton CEM V	$1,68 \times 10^{-11}$	$4,06 \times 10^{-12}$	$4,03 \times 10^{-10}$	$9,89 \times 10^{-8}$

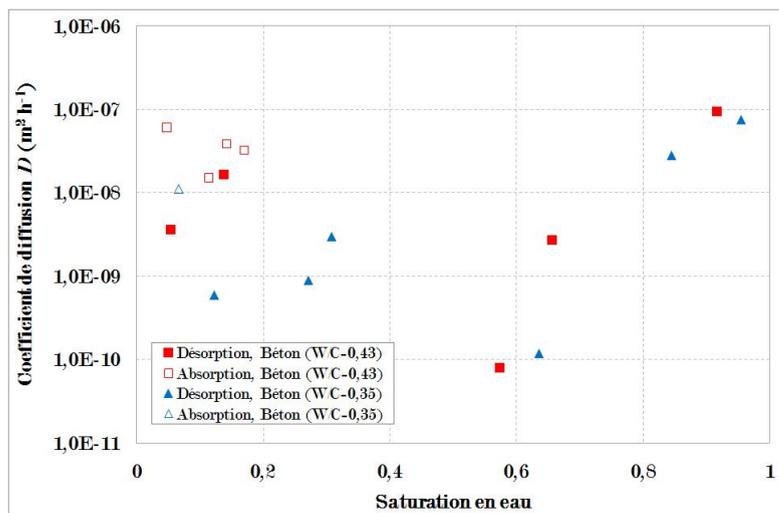


FIGURE V.19 – Valeurs du coefficient de diffusion D de la désorption et de l'adsorption [Baroghel-Bouny (2007)]

cinétiques très différentes. Par ailleurs, pour la simulation de l'imbibition capillaire, le coefficient de diffusion est souvent considéré comme une fonction croissante de la teneur d'eau [Mitkov et al. (1998), Lockington et al. (1999)].

V.3.4 Conclusion partielle

La simulation à base de la théorie de diffusion fonctionne pour l'essai de désorption sous humidité relative de 50% et l'essai d'adsorption sous humidité relative de 100% pendant une période de 5 semaines. Mais le résultat numérique tend à dévier du résultat expérimental lorsque la durée d'essai est supérieure à 5 semaines. La supposition, où le coefficient de diffusion est constant, n'est plus suffisante pour simuler la sorption durant plus de temps.

On peut simuler l'essai d'imbibition capillaire en le transformant en deux problèmes

symétriques, en supposant que l'imbibition capillaire en bas et l'adsorption en haut sont indépendantes. Le coefficient de diffusion de la partie imbibition est beaucoup plus grand que celui de la partie adsorption. Mais dans ce cas, la valeur absolue du coefficient de diffusion n'a plus clairement de signification physique.

Dans la suite, on va simuler le transfert d'eau avec une autre forme de l'équation constitutive - l'équation V.6 où la capacité de l'écoulement non-saturé est exprimée par la perméabilité à l'eau qui est définie comme une fonction de la saturation en eau.

V.4 Simulation selon l'équation de Richards

Dans cette partie, une simulation selon l'équation de Richards par le logiciel « Code_Aster » est présentée. L'essai de désorption sous humidité relative de 50%, l'essai d'adsorption sous humidité relative de 100%, les essais d'imbibition capillaire sans et sous pression d'injection sont simulés.

V.4.1 Logiciel « Code_Aster »

Le logiciel « Code_Aster » (Code d'Analyses des Structures et Thermomécanique pour des Etudes et des Recherches) est un code général de calcul thermomécanique, qui comprend toute une panoplie de méthodes d'analyse et de modélisations multi-physiques non linéaires. La méthode des éléments finis (FEM) est implantée pour la discrétisation.

On utilise le module « THM » du « Code_Aster » qui traite les équations de la mécanique de milieux continus en utilisant la théorie des milieux poreux éventuellement non-saturés et considérant que les phénomènes mécaniques, thermiques et hydrauliques sont complètement couplés [*Granet* (2009)].

On applique la modélisation « AXIS_HH2D » du module « THM ». « AXIS » indique l'analyse axisymétrique (figure V.20); « HH2 » indique la modélisation hydraulique avec deux pressions inconnues et deux constituants; « D » indique que les points d'intégration sont pris aux sommets des éléments et ce traitement permet de diagonaliser la matrice afin d'éviter les oscillations des problèmes hydrauliques. [*Granet* (2009)]

V.4.2 Hypothèses et équations

L'équation V.6 est utilisée pour simuler le transfert d'eau. La relation entre la saturation en eau S_w et la pression capillaire p_c est définie par le double-modèle de rétention (équation V.12). La perméabilité relative à l'eau est respectivement décrite par le modèle de Purcell, le modèle de Burdine et le modèle de Mualem (équations V.30, V.32 et V.34).

Pour tous les essais, la température reste à 20 °C. Donc, il n'existe pas l'effet de température dans la simulation. Par ailleurs, on néglige l'effet de la gravité d'eau et l'effet de pression de gaz.

L'algorithme d'itération dans le « Code_Aster » demande les valeurs des dérivées dS_w/dp_c , dp_c/dS_w et $dk_{w,r}/dS_w$. La valeur de dS_w/dp_c est directement calculée par l'équation V.12. La valeur de dp_c/dS_w est donnée par

$$\frac{dp_c}{dS_w} = \frac{1}{\frac{dS_w}{dp_c}} \quad (\text{V.47})$$

La valeur de $dk_{w,r}/dS_w$ est donnée par

$$\frac{dk_{w,r}}{dS_w} = \frac{dk_{w,r}}{dp_c} \frac{dp_c}{dS_w} \quad (\text{V.48})$$

où dk_w/dp_c est directement calculé par les équations V.30, V.32 et V.34.

Dans le module « THM », la saturation en eau S_w est définie par

$$S_w = \frac{S - S_r}{1 - S_r} \quad (\text{V.49})$$

où S est la saturation absolue, S_r est la saturation résiduelle. Dans notre simulation, on suppose que la saturation résiduelle est égale à 0.

Cependant on peut trouver que la valeur de $dk_{w,r}/dS_w$ tend vers l'infini lorsque la saturation en eau S_w s'approche de 1

$$\left. \frac{dk_{w,r}}{dS_w} \right|_{S_w=1} = \infty \quad (\text{V.50})$$

Pour éviter ce problème, le modèle de perméabilité relative à l'eau est remplacé par un polynôme du second ordre $PL(S)$ lorsque la saturation absolue est supérieure à une saturation maximale S_{max} [Granet (2011b)]

$$PL(S_{max}) = k_{w,r}(S_{max}) \quad (\text{V.51})$$

$$\left. \frac{dPL}{dS_w} \right|_{S=S_{max}} = \left. \frac{dk_{w,r}}{dS_w} \right|_{S=S_{max}} \quad (\text{V.52})$$

$$PL(1) = 1 \quad (\text{V.53})$$

En effet, avec le modèle de rétention, on peut trouver la pression capillaire minimale $p_{c,min}$ qui donne la saturation maximale S_{max} par

$$S(p_{c,min}) = S_{max} \quad (\text{V.54})$$

Lorsque $S > S_{max}$ (c'est à dire que $p_c < p_{c,min}$), la saturation absolue est donnée par

une hyperbole $H(p_c)$

$$H(p_c) = 1 - \frac{A}{B - p_c} \quad (\text{V.55})$$

$$H(p_{c,min}) = S_{max} \quad (\text{V.56})$$

$$\left. \frac{dH}{dp_c} \right|_{p_{c,min}} = \left. \frac{dS}{dp_c} \right|_{p_{c,min}} \quad (\text{V.57})$$

où A, B sont deux paramètres déterminés par les deux équations V.56 et V.57.

V.4.3 Prétraitements

a) Paramètres généraux

Le tableau V.5 montre les valeurs des paramètres qui sont constants pour différents essais.

TABLE V.5 – Valeurs des paramètres généraux

Saturation résiduelle S_r	0,0
Saturation maximale S_{max}	0,999999
Constante de gaz parfait R ($\text{J}\cdot\text{K}^{-1}\cdot\text{mol}^{-1}$)	8,3144
Masse volumique d'eau ρ_w ($\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$)	1000,0
Viscosité d'eau μ_w ($\text{Pa}\cdot\text{s}$)	0,001
Perméabilité à l'eau du CEM I (m^2)	$8,00 \times 10^{-21}$
Perméabilité à l'eau du CEM V (m^2)	$2,35 \times 10^{-21}$
Porosité du CEM I	0,086
Porosité du CEM V	0,120

b) Maillage numérique

Les conditions aux limites et les conditions initiales des essais expérimentaux permettent de faire une analyse axisymétrique, voir Figure V.20. Le maillage est constitué par des éléments quadratiques et quadrangulaires (QUAD8), voir Figure V.24. Mais l'interpolation des pressions dans le processus de calcul sur un segment est linéaire. Ceci vise à éviter l'oscillation des résultats [Granet (2011a), Granet (2011b)].

La variation de la longueur d'élément n'influence pas le résultat numérique, voir Figure V.22. Mais la variation de la hauteur d'élément influence le résultat, voir Figure V.23. Cependant lorsque la hauteur d'élément diminue de 0,3 à 0,15mm, le changement du résultat devient faible : la variation de saturation est inférieure à 1,05%. Ainsi, 200

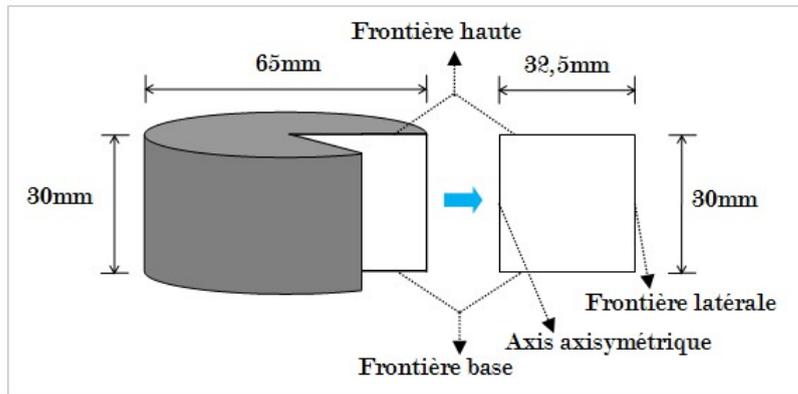


FIGURE V.20 – Modèle géométrique de simulation numérique

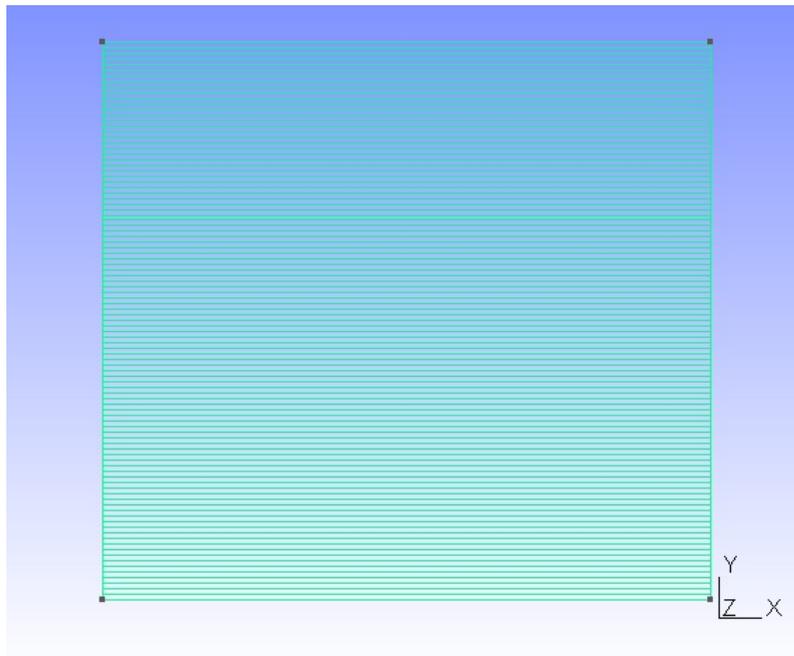


FIGURE V.21 – Maillage des éléments finis

éléments de hauteur de 0,15mm et de longueur de 32,5mm sont finalement utilisés dans la simulation.

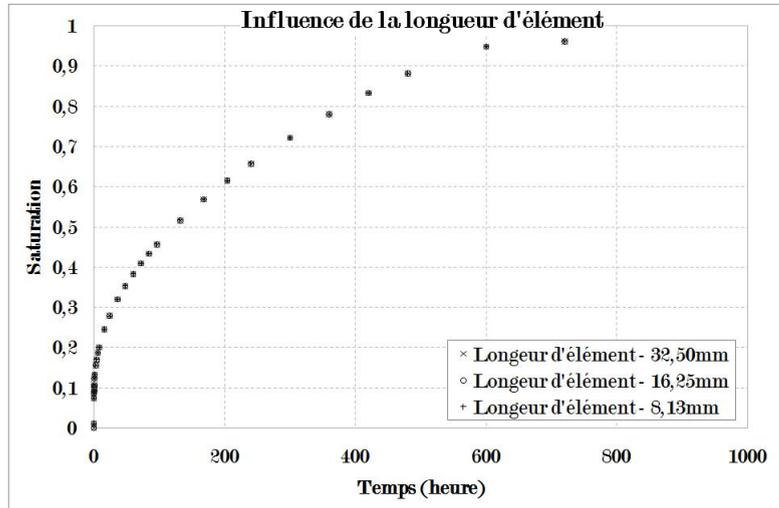


FIGURE V.22 – Influence de variation de la longueur d'élément sur le résultat

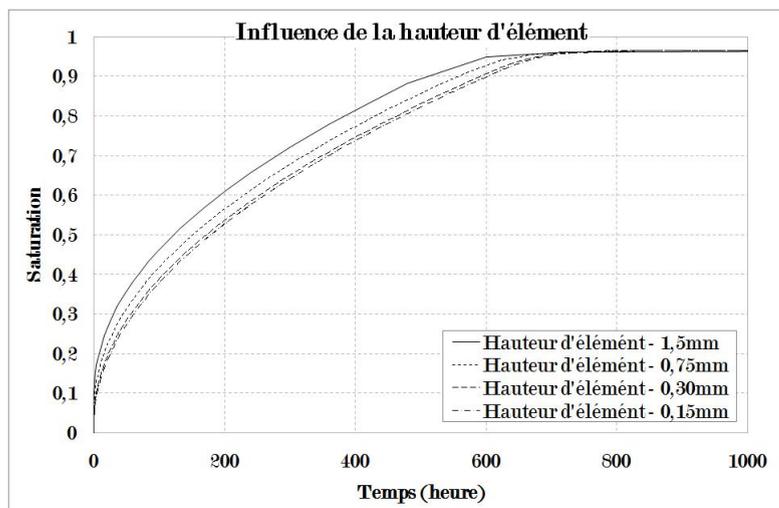


FIGURE V.23 – Influence de variation de la hauteur d'élément sur le résultat

c) Intervalle du temps

Dans cette simulation, pour définir l'intervalle du temps, des points principaux de temps sont d'abord déterminés et ensuite les nombres de subdivisions sont donnés, voir Tableau V.6. La variation d'intervalle influence le résultat, mais le changement du résultat n'est que 0,5% lorsque l'intervalle diminue de 5 fois, voir Figure V.24. Donc, le PLAN-100 est choisi pour la simulation, voir Tableau V.6.

TABLE V.6 – Influence d'intervalles de temps

Points principaux (s)	10	100	600	...	1728000	2592000	...
Nombre de subdivisions (PLAN-20)	20	20	20	...	20	20	...
Nombre de subdivisions (PLAN-50)	50	50	50	...	50	50	...
Nombre de subdivisions (PLAN-100)	100	100	100	...	100	100	...

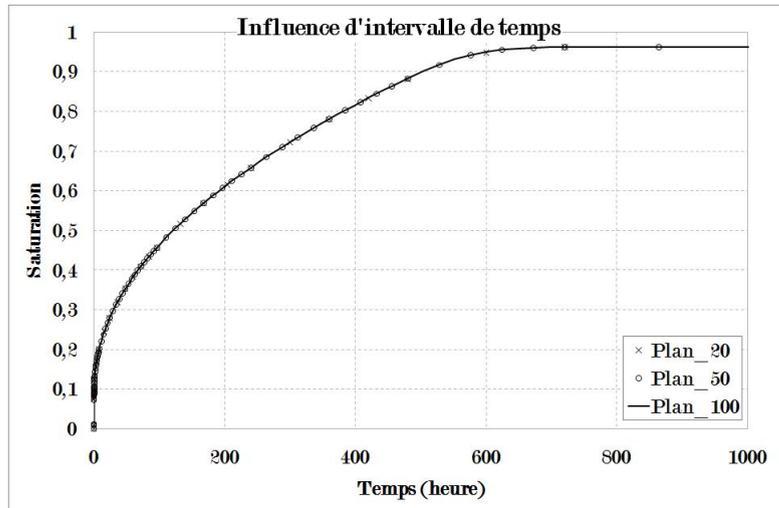


FIGURE V.24 – Influence de la variation d'intervalle de temps sur le résultat

d) Conditions initiales

L'échantillon dans l'essai de désorption sous humidité relative de 50% est initialement saturé et donc la saturation initiale est égale à 1. Mais l'échantillon est initialement sec dans les autres essais et la saturation initiale est donc égale à 0. La modélisation « AXIS_HH2D » ne permet pas de définir directement la condition initiale par la saturation et la saturation initiale doit être exprimée par la pression capillaire. La saturation en eau $S_w = 1$ correspond à une pression capillaire $p_c = 0$, voir Tableau V.7. Théoriquement, la pression capillaire doit être infinie pour définir une saturation égale à 0, ce qui est impossible dans la simulation numérique. En pratique, on applique une grande pression capillaire qui assure que $S_w \leq 0,01$, voir Tableau V.7.

e) Conditions aux limites

Pour un modèle axisymétrique, il faut définir les conditions aux limites sur 3 frontières : frontière basse, frontière haute et frontière latérale, voir Figure V.20. La surface latérale de l'échantillon est étanchée par adhésif empêchant les échanges hydrauliques entre l'échantillon et l'environnement par la surface latérale. La frontière basse est soit en

TABLE V.7 – Conditions initiales et conditions aux limites

Cas		Désorption sous humidité relative de 50%	Adsorption sous humidité relative de 100%	Imbibition capillaire sans p_{inj}	Imbibition capillaire avec p_{inj}
CEM I	$p_{c,initiale}$ (Pa)	0	$2,18 \times 10^9$	$2,18 \times 10^9$	$2,18 \times 10^9$
	$p_{c,haute}$ (Pa)	$9,38 \times 10^7$	$1,456 \times 10^6$	$1,456 \times 10^6$	$1,456 \times 10^6$
	$p_{c,basse}$ (Pa)	$9,38 \times 10^7$	$1,456 \times 10^6$	0	$-5,0 \times 10^5$ ou $-1,5 \times 10^6$
CEM V	$p_{c,initiale}$ (Pa)	0	$2,49 \times 10^9$	$2,49 \times 10^9$	$2,49 \times 10^9$
	$p_{c,haute}$ (Pa)	$9,38 \times 10^7$	$1,456 \times 10^6$	$1,456 \times 10^6$	$1,456 \times 10^6$
	$p_{c,basse}$ (Pa)	$9,38 \times 10^7$	$1,456 \times 10^6$	0	$-5,0 \times 10^5$ ou $-1,5 \times 10^6$

contact avec l'eau sans ou sous pression d'injection (dans les essais d'imbibition capillaire) soit sous humidité relative (dans l'essai de désorption sous humidité relative de 50% ou dans l'essai d'adsorption sous humidité relative 100%). La frontière haute reste sous une humidité relative dans tous les essais. En bref, il y a 4 types de conditions aux limites : « contact avec l'eau sans p_{inj} », « contact avec l'eau sous p_{inj} », « humidité relative de 50% » et « humidité relative de 100% ».

La pression capillaire correspondant à la condition « contact avec l'eau sans p_{inj} » est égale à 0 et la condition « contact avec l'eau en p_{inj} » est définie par une pression capillaire égale à $-p_{inj}$, voir Tableau V.7.

La condition « humidité relative de 50% » est déterminée par l'équation V.9, voir Tableau V.7.

Selon l'équation V.9, la condition « humidité relative de 100% » correspond à une pression capillaire égale à 0. Avec celle-ci on ne peut pas distinguer la condition « contact avec l'eau » et la condition « humidité relative de 100% », alors que ces deux conditions ont des cinétiques différentes (section I.2). Donc, pour distinguer les deux, on suppose que l'humidité relative de 100% ne peut pas remplir les pores dont le rayon est plus grand que 100 nm (section I.2.1) et la condition « humidité relative de 100% » est exprimée par une pression capillaire qui correspond aux pores dont le rayon est 100 nm selon l'équation de Young-Laplace, voir Tableau V.7.

V.4.4 Résultats

a) Désorption sous humidité relative de 50%

Pour le béton CEM I, le résultat numérique des trois modèles de perméabilité relative a généralement la même tendance que le résultat expérimental, voir Figure V.25. Pour le béton CEM V, le résultat du modèle de Mualem est plus proche du résultat expérimental, voir Figure V.26.

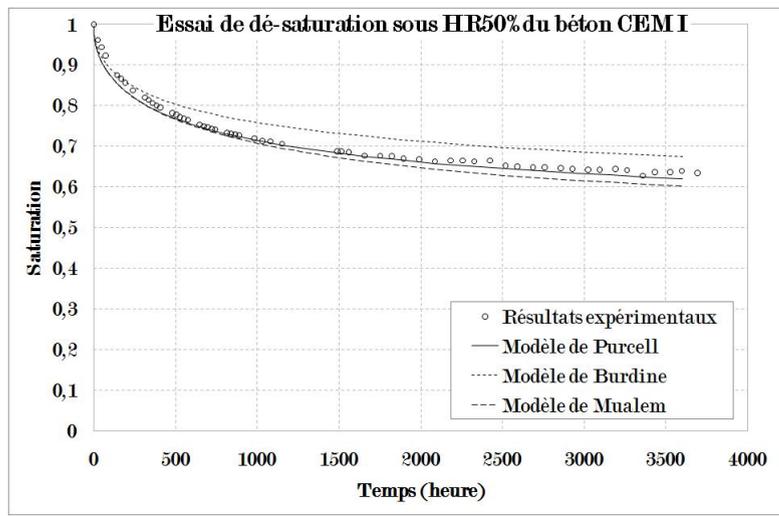


FIGURE V.25 – Simulation de désorption sous HR50% du béton CEM I

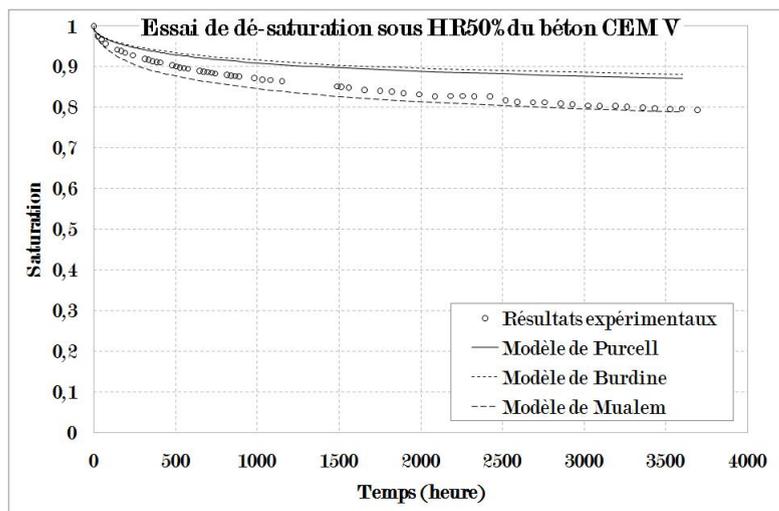


FIGURE V.26 – Simulation de désorption sous HR50% du béton CEM V

b) Adsorption sous humidité relative de 100%

Pour le béton CEM I, le modèle de Mualem reproduit bien la tendance de l'évolution de saturation (sauf qu'au début ce modèle surestime la saturation), voir Figure V.27. Pour le béton CEM V, le résultat numérique est plus grand que le résultat expérimental, voir Figure V.28. Cependant si on augmente la perméabilité saturée à l'eau de $2,35 \times 10^{-21} \text{m}^2$ à $4,00 \times 10^{-21} \text{m}^2$ (en effet, la perméabilité mesurée varie de $1 \times 10^{-21} \text{m}^2$ à $4,2 \times 10^{-21} \text{m}^2$, voir Figure III.9), on peut obtenir de meilleures simulations.

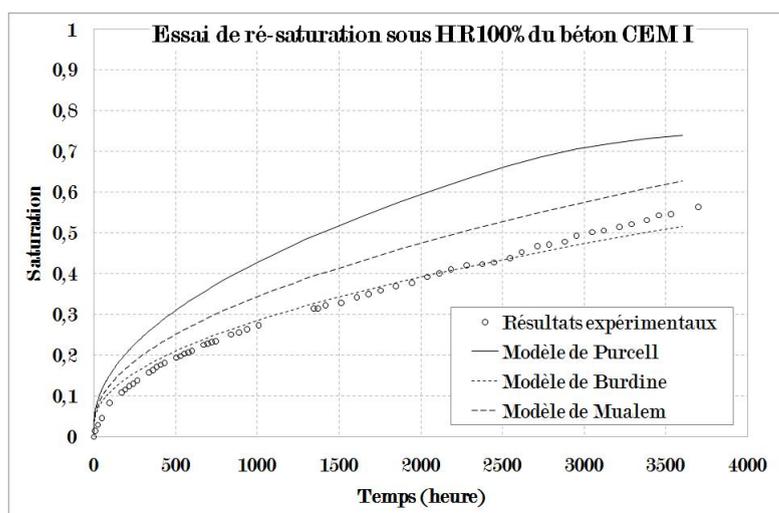


FIGURE V.27 – Simulation d'adsorption sous HR100% du béton CEM I

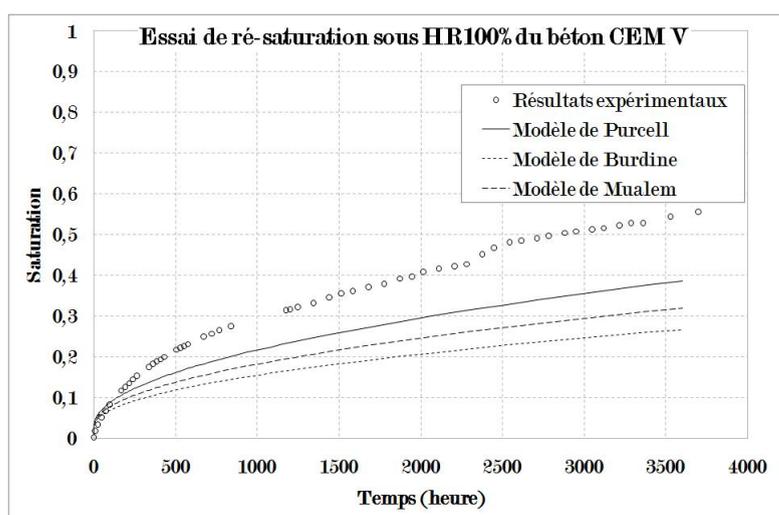


FIGURE V.28 – Simulation d'adsorption sous HR100% du béton CEM V

c) **Imbibition capillaire**

La simulation ne peut pas exactement déterminer le volume d'eau entrant dans l'essai d'imbibition capillaire sous pression d'injection mais elle peut refléter la tendance de l'influence de pression d'injection sur l'imbibition capillaire, voir Figures V.29 et V.30.

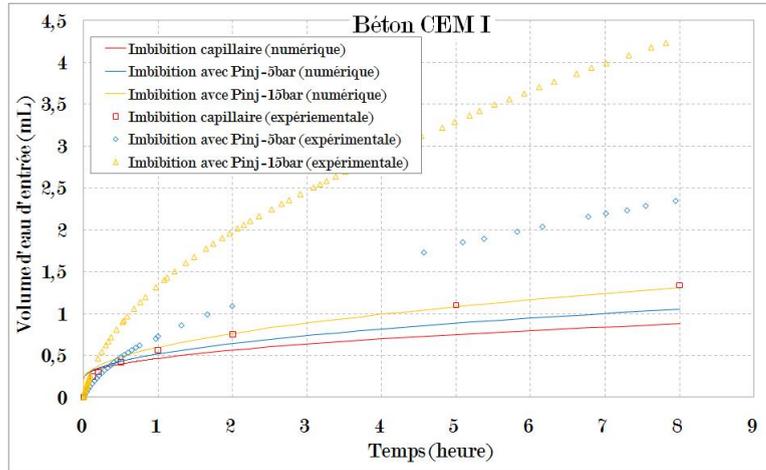


FIGURE V.29 – Simulation des essais d'imbibition capillaire sans et avec pression d'injection du béton CEM I

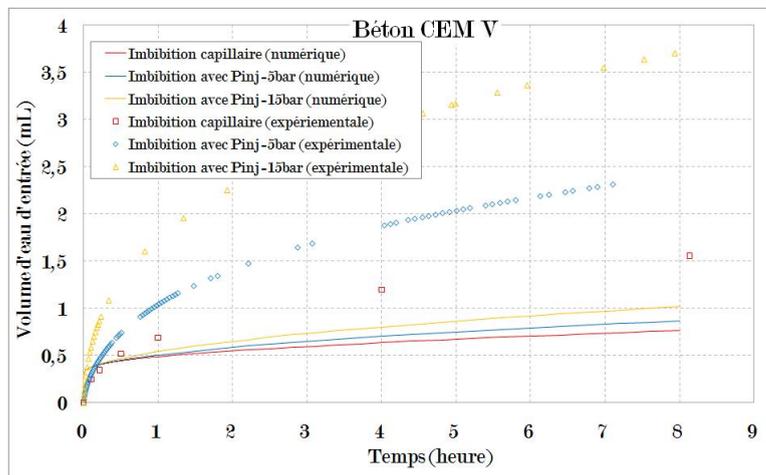


FIGURE V.30 – Simulation des essais d'imbibition capillaire sans et avec pression d'injection du béton CEM V

Par ailleurs, si on inspecte la simulation de l'essai d'imbibition capillaire sans pression d'injection pendant une période plus longue, on trouve que le résultat numérique a une cinétique plus lente (voir Figures V.31 et V.32) à cause de l'absence des grands pores. La distribution de porosité déterminée par l'isotherme de sorption indique que les grands pores, dont le rayon est supérieur à 500nm, ne sont pas considérés dans la simulation, voir

Figure V.5. Cependant l'écoulement d'imbibition capillaire dans ces grands pores est plus rapide que celui des petits pores et l'imbibition capillaire dans ces grands pores peut être accélérée par la pression d'injection. Donc, sans ces grands pores, la simulation numérique sous-estime la vitesse d'imbibition capillaire.

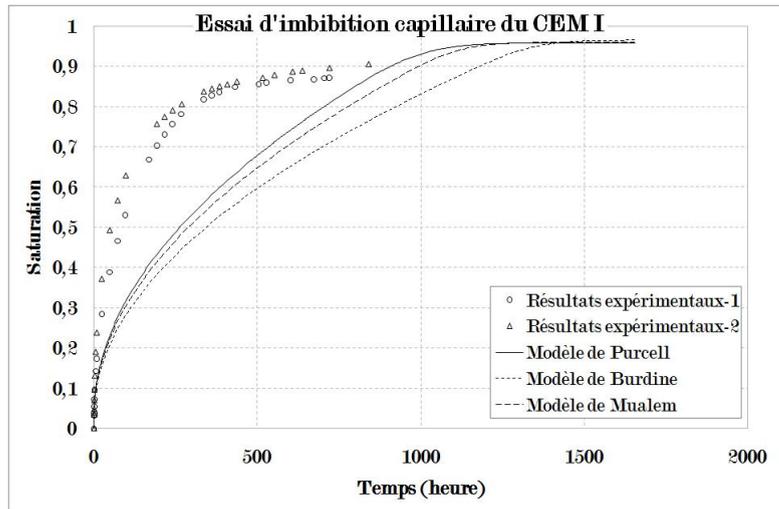


FIGURE V.31 – Simulation d'imbibition capillaire sans pression d'injection du béton CEM I

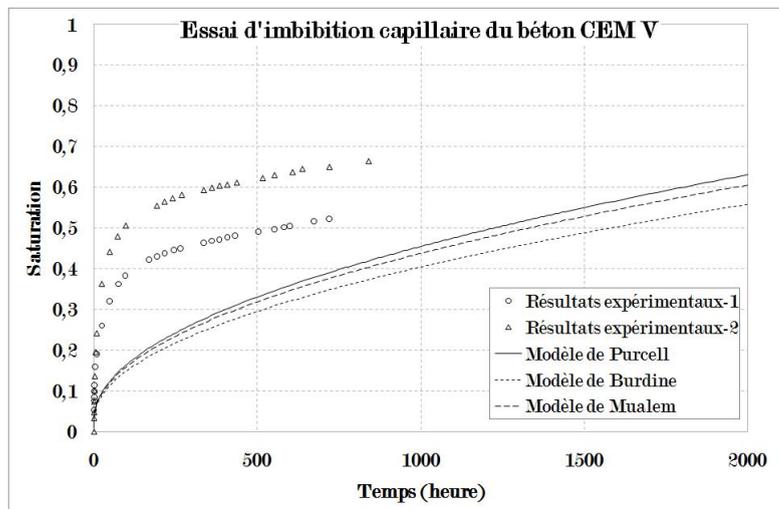


FIGURE V.32 – Simulation d'imbibition capillaire sans pression d'injection du béton CEM V

d) Discussions

Pour tous les cas de resaturation, le résultat numérique au début de la simulation a une cinétique plus rapide que le résultat mesuré, voir Figures V.27, V.28, V.29 et V.30. Pour voir les détails au début de la simulation, on inspecte les résultats de la simulation des essais d'imbibition capillaire sans et sous pression d'injection pour le béton CEM I (Figure V.29) pendant les 100 premières secondes, voir Figure V.33. La resaturation rapide au début de la simulation est due aux volumes V_1 et V_2 .

Le volume V_1 reflète la saturation initiale de l'échantillon. Pour un échantillon sec, la saturation initiale doit être égale à 0 et ceci désigne une pression initiale égale à l'infini. Mais il est impossible de définir l'infini dans la simulation. Donc, une pression qui assure une saturation initiale inférieure à 0,01 est utilisée. Donc, pour l'échantillon du béton CEM I qui a un volume environ de 100 cm^3 et une porosité de 0,086, le volume V_1 est inférieure à 0,086 mL, voir Figure V.33. Ce volume représente la saturation initiale dans la simulation. Cependant la vraie saturation initiale expérimentale est égale à 0. Alors ce volume est l'erreur de la simulation mais cette erreur est très faible par rapport au résultat de la simulation des essais où la saturation augmente d'au moins 0,5.

Dans la simulation numérique, la pression aux limites $p_{c,haute}$ ou $p_{c,basse}$ (Tableau V.7) n'est pas appliquée au début de la simulation (au temps $t = 0$). Sinon, l'écart entre la pression aux limites et la pression initiale sera trop grand produisant des problèmes de convergence. Pour éviter ces problèmes, on définit qu'au temps $t = 0$ la pression aux limites est égale à la pression initiale et après la pression aux limites change linéairement de la pression initiale à la pression $p_{c,impose}$ pendant 10 secondes (10 secondes est une période très courte pour une simulation de 8 heures ou 2000 heures), voir Figure V.33. Le volume V_2 est justement dû à ce changement linéaire de pression aux limites.

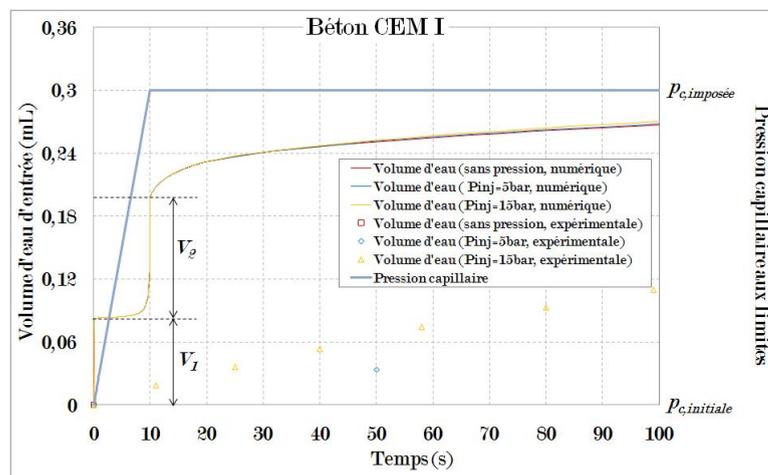


FIGURE V.33 – Les premier 100 secondes de la simulation des essais d'imbibition capillaire sans et avec pression d'injection pour le béton CEM I

Donc, l'augmentation rapide du résultat numérique au début de la simulation est due à l'erreur de la saturation initiale et à l'important écart entre la pression aux limites et la pression initiale de l'échantillon.

V.4.5 Conclusion partielle

Avec le double-modèle de rétention et les courbes de la perméabilité relative à l'eau déduites à partir de l'isotherme de sorption, on peut simuler le processus de sorption et le modèle de Mualem est proposé pour la simulation de la sorption sous humidité relative. Mais pour l'imbibition capillaire, on ne peut pas obtenir de concordance générale. En bref, la simulation de sorption sous humidité relative se fait mieux que celle de l'imbibition capillaire, car les hypothèses liées à la perméabilité relative sont plus réalistes dans le phénomène de sorption sous humidité relative. Par ailleurs, l'isotherme de sorption qu'on utilise dans la simulation ne reflète pas les pores dont le rayon est supérieur à 500 nm, qui pourtant jouent un grand rôle dans l'imbibition capillaire selon l'équation de Lucas-Washburn.

V.5 Conclusion

Un double modèle de rétention qui donne une meilleure simulation de l'isotherme de sorption pour les bétons CEM I et CEM V est proposé. Avec ce modèle, les courbes de la perméabilité relative au gaz et à l'eau sont déduites. L'hystérésis de l'isotherme de sorption de deux bétons cause l'hystérésis de la perméabilité relative à l'eau alors qu'il n'y a pas de phénomène d'hystérésis remarquable sur la perméabilité relative au gaz.

Avec le double-modèle de rétention et les expressions de la perméabilité relative à l'eau, on peut simuler le processus de sorption. En général, le modèle de Mualem est proposé pour la simulation de la sorption sous humidité relative.

Pour la simulation à partir de la théorie de diffusion, on peut constater une concordance entre le résultat numérique et les données expérimentales de l'essai de désorption sous humidité relative 50% et l'essai d'adsorption sous humidité relative 100% pendant une période de 5 semaines. Dans la simulation, on transforme l'essai d'imbibition capillaire en deux problèmes symétriques : une partie adsorption et une partie imbibition capillaire. Le modèle de diffusion reproduit bien la partie adsorption. Pour la partie imbibition, cette simulation dévie du résultat expérimental lorsque la saturation est plus grande que 0,8.

Conclusion générale

Cette étude a été consacrée à la mesure de la perméabilité relative au gaz et à l'eau de matériaux cimentaires partiellement saturés, et à la simulation du transfert d'eau dans le béton.

Les notions sur la perméabilité au gaz et à l'eau et les principes du transfert d'eau dans le matériau poreux ont d'abord été présentés. La perméabilité saturée est la capacité du milieu poreux à se laisser traverser par un fluide qui remplit complètement tous les pores interconnectés. La perméabilité effective est mesurée lorsque le matériau est partiellement saturé par ce fluide. La perméabilité relative est le rapport entre la perméabilité effective et la perméabilité saturée. La sorption d'eau (adsorption ou désorption) sous humidité relative est contrôlée par les forces de Van der Waals, la diffusion de vapeur et la condensation capillaire. Pour une humidité relative fixe, l'adsorption de matériaux cimentaires donne souvent une saturation plus faible que celle de la désorption. L'effet de "inkbottle" et le changement structural des pores interfeuillets sont considérés comme la cause de cette hystérésis de sorption. La capillarité provoque l'imbibition capillaire dans les pores non-saturés en eau lorsque le matériau poreux est en contact avec l'eau. La sorption sous humidité relative et l'imbibition capillaire peuvent tous les deux saturer le matériau poreux, cependant ils amènent deux formes contrastées de distribution d'eau dans le matériau.

La mesure de la perméabilité relative au gaz d'un mortier de référence et d'un béton s'employant dans le centre de stockage de déchets faiblement et moyennement radioactifs de l'Aube (béton de Soulaines) a ensuite été détaillée. Les résultats de la perméabilité au gaz mesurés respectivement par deux méthodes, « Régime Permanent » et « Pulse Test », sont cohérents. Le mortier de référence est plus poreux que le béton de Soulaines. Selon le résultat du test de porosimétrie de mercure, la distribution de porosité du mortier présente 2 crêtes, respectivement au rayon de 5nm et au rayon de 50nm ; tandis que la distribution de porosité du béton a une seule crête au rayon de 5nm. Ainsi le mortier présente plus de grands pores (dont le rayon est proche de 50nm) que le béton. Ce qui le rend plus perméable que le béton. Par ailleurs, on peut trouver une corrélation entre la perméabilité et la porosité pour le mortier, car la variation de la porosité des échantillons correspond au changement de fraction des grands pores dans le mortier et ces grands pores sont prédominants dans la perméabilité. Pour les deux matériaux cimentaires, la

perméabilité relative au gaz en fonction de saturation en eau forme une courbe concave, qui peut être modélisée par le modèle de van Genuchten-Mualem.

Une méthode de mesure de la perméabilité relative à l'eau de deux bétons CEM I et CEM V, qui seront utilisés dans un ouvrage de stockage profond de déchets radioactifs, a été proposée. Cependant elle ne permet pas d'isoler le débit de perméation de l'écoulement non-saturé dans le milieu poreux, car l'écoulement capillaire dans les pores non-remplis est prédominant dans l'écoulement total du béton partiellement saturé. Dans le cas de stockage de déchets radioactifs, le béton, qui constitue les barrières, sera d'abord désaturé par le système de ventilation pendant le remplissage du stockage et puis subira une resaturation à cause des apports d'eau par l'argilite. L'imbibition capillaire est donc prédominante dans la resaturation du béton sur site et la perméabilité à l'eau de l'argilite, qui fournit l'eau au béton, deviendra le paramètre clef.

L'imbibition capillaire d'eau de deux bétons CEM I et CEM V est influencé par la pression d'injection, car elle accélère l'entrée d'eau dans les pores dont la pression capillaire s'approche de la pression d'injection. La courbe « sorption capillaire v.s. racine du temps » dévie de l'équation de Lucas-Washburn lorsque l'imbibition capillaire dure longtemps (un mois dans notre essais). Le modèle de tubes parallèles peut généralement reproduire le processus d'imbibition capillaire en considérant l'effet de la rondeur de section et l'effet de la tortuosité des tubes. La perméabilité relative au gaz de l'échantillon pré-traité par l'imbibition capillaire est plus faible que celle de l'échantillon pré-traité par adsorption sous humidité relative, car l'imbibition capillaire forme une barrière d'eau horizontale dans l'échantillon, alors que la distribution d'eau dans le cas d'adsorption sous humidité relative tend à une distribution d'eau homogène.

La dernière partie de ce mémoire de thèse a été destinée à la simulation du transfert d'eau dans les bétons CEM I et CEM V. Premièrement, la simulation à base de la théorie de diffusion permet de constater une concordance entre le résultat numérique et les données expérimentales de l'essai de désorption sous humidité relative de 50% et de l'essai d'adsorption sous humidité relative de 100% pendant une période de 5 semaines. Cependant le résultat numérique tend à dévier du résultat expérimental lorsque la durée d'essai est supérieure à 5 semaines. Dans cette simulation, on a supposé que le coefficient de diffusion reste constant, ce qui est valide pendant une courte période (par exemple, 5 semaines) mais n'est plus suffisant pour une plus longue période. On a transformé l'essai d'imbibition capillaire en deux problèmes symétriques : une partie adsorption et une partie imbibition capillaire. Le modèle de diffusion reproduit bien la partie adsorption. Pour la partie imbibition, cette simulation basée sur la théorie de diffusion dévie du résultat expérimental lorsque la saturation est supérieure à 0,8. Ensuite, l'isotherme de sorption des bétons CEM I et CEM V est modélisé par un double-modèle de rétention proposé. Avec le modèle de Purcell, celui de Burdine et celui de Mualem, les courbes de la perméabilité relative au gaz et à l'eau des bétons CEM I et CEM V sont déduites. L'hystérésis

de l'isotherme de sorption conduit à l'hystérésis de la perméabilité relative à l'eau tandis que la perméabilité relative au gaz n'en a pas de remarquable. Avec le double-modèle de rétention et les expressions de la perméabilité relative à l'eau, on peut simuler le processus de sorption sous humidité relative. Parmi les 3 modèles de la perméabilité relative à l'eau, le modèle de Mualem est choisi. La différence de saturation peut arriver de 0,2 à la fin de l'essai d'adsorption sous humidité relative 100% qui dure 5 mois. En général, le modèle de Mualem donne la meilleure concordance entre les données expérimentales et les données numériques.

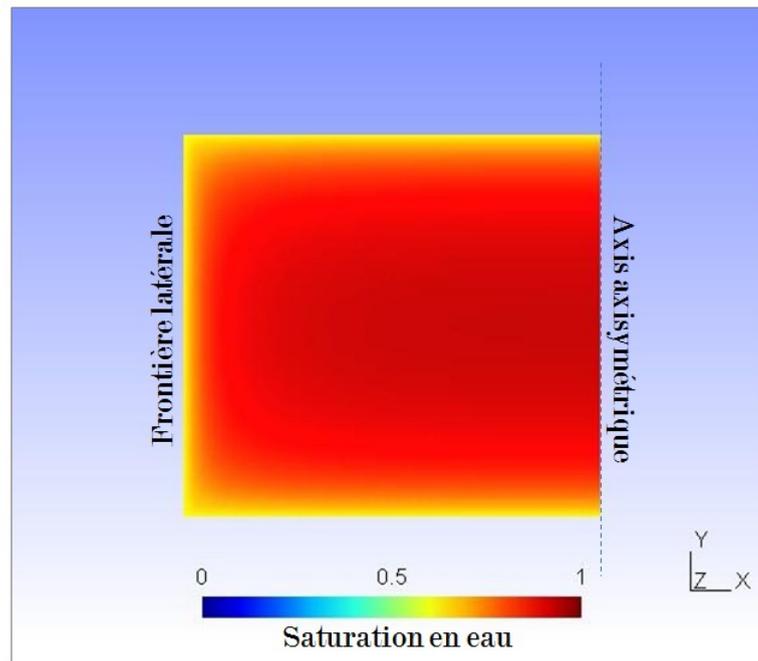


FIGURE V.34 – Simulation de désorption sous humidité relative 50%

En perspective, on va étudier la perméabilité à l'eau du mortier de référence et du béton de Soulaines pour mieux comprendre cette propriété des matériaux cimentaires. La connaissance de la distribution de porosité et la structure de pore interconnecté est essentielle, nécessitant plus d'information microscopique. D'autre part, pour la simulation, on peut l'améliorer et la développer par ces idées : (1) considérer l'effet des pores dont le rayon est supérieur à 500nm. Les valeurs des paramètres du double-modèle de rétention seront déterminées par le résultat expérimental de l'isotherme de sorption. Mais l'imbibition capillaire n'a pas la même cinétique que la sorption. Donc, une idée est de déterminer les paramètres par le résultat du test d'intrusion de mercure et alors les grands pores seront comptés dans la simulation ; (2) essayer de simuler les problèmes 2D et 3D. On a desaturé des échantillons sous différentes humidités relatives de 11% à 98% dans la préparation de la mesure de la perméabilité relative à l'eau (chapitre III). Ces échantillons ont perdu

de l'eau par trois frontières et on peut décrire un problème 2D. Par exemple, on peut essayer de simuler le processus de désorption sous humidité relative 50% d'un échantillon initialement saturé, voir Figure [V.34](#).

Bibliographie

- Abell, A. B., K. L. Willis, et D. A. Lange (1999), Mercury intrusion porosimetry and image analysis of cement-based materials, *Journal of Colloid and Interface Science*, 211, 39–44. [39](#), [40](#)
- Andra (2001a), *Choix des formulations de référence : ciment CPA-CEM I, caractéristiques mécaniques et de durabilité, document interne Andra C RP 0 CTP 01-002/A*, Andra, Châtenay-Malabry (France). [15](#), [66](#)
- Andra (2001b), *Choix des formulations de bétons de référence, document interne Andra C RP 0 LER 01-004/A*, Andra, Châtenay-Malabry (France). [15](#), [66](#)
- Andra (2005a), *Dossier 2005 - Les recherches de l'Andra sur le stockage géologique des déchets radioactifs à haute activité et à vie longue*, Andra, Châtenay-Malabry (France). [9](#), [21](#), [23](#)
- Andra (2005b), *Dossier 2005 - Evolution phénoméologique du stockage géologique*, Andra, Châtenay-Malabry (France). [9](#), [23](#), [24](#)
- Andra (2008), *Spécification technique applicable à l'élaboration du béton de remplissage des ouvrages de stockage du CSFMA, interne Andra EXP SP APRO 08-0026*, Andra, Châtenay-Malabry (France). [15](#), [44](#)
- Andra (2009a), *L'Andra-Tout savoir sur la gestion des déchets radioactifs*, Andra, Châtenay-Malabry (France). [21](#)
- Andra (2009b), *En résumé - Inventaire national des matières et déchets radioactifs (2009)*, Andra, Châtenay-Malabry (France). [21](#)
- Andra (2009c), *Catalogue descriptif des familles - Inventaire national des matières et déchets radioactifs (2009)*, Andra, Châtenay-Malabry (France). [9](#), [21](#)
- BAROGEL-BOUNY, V. (1994), *Caractérisation des pâtes de ciment et des bétons, Méthodes, analyses, interprétations*, Laboratoire central des ponts et chaussées. [9](#), [34](#)

- Baroghel-Bouny, V. (2007), Water vapour sorption experiments on hardened cementitious materials. part ii : Essential tool for assessment of transport properties and for durability prediction, *Cement and Concrete Research*, 37, 438–454. [12](#), [112](#), [114](#)
- Bazant, Z., et L. Najjar (1971), Drying of concrete as a nonlinear diffusion problem, *Cement and Concrete Research*, 1(5), 461 – 473. [72](#)
- Billard, Y. (2003), Contribution à l'étude des transferts de fluides au sein d'une paroi en béton. application au cas des enceintes de confinement en conditions d'épreuve et accidentelle, Thèse, Institut National des Sciences Appliquées de Lyon. [9](#), [34](#)
- Brue, F. (2009), Roles de la temperature et de la composition sur le couplage thermo-hydro-mecanique des betons, Thèse, Ecole Centrale de Lille. [76](#)
- Burdine, N. T. (1953), Relative permeability calculations from pore size distribution data, *Petroleum Transactions*, 198, 71–78. [103](#)
- Care, S., et F. Derkx (2011), Determination of relevant parameters influencing gas permeability of mortars, *Construction and Building Materials*, 25(3), 1248 – 1256. [60](#)
- Carlier, J., G. Fan-Chao, et N. Burlion (2007), Evaluation expérimentale des propriétés hydrodynamiques des matériaux cimentaires, in *18ème Congrès Français de Mécanique*, pp. 27–31. [96](#)
- Chaude, R., T. Kishi, et K. Maekawa (1999), *Modelling of concrete performance : Hydration, Microstructure and Mass Transport*, Spon Press, New York. [35](#)
- Chen, J., J. W. Hopmans, et M. E. Crismer (1999), Parameter estimation of two-fluid capillary pressure-saturation and permeability functions, *Advances in Water Resources*, 22, 479–493. [61](#), [96](#), [103](#)
- Chen, W., F. Skoczylas, et T. Dubois (2011), Gas relative permeability of high-performance concrete : effect of water saturation under phase desorption and sorption, in *Proceeding of International RILEM Conference on Advance in Construction Materials Through Science and Engineering*. [96](#)
- Chen, X.-T., T. Rougelot, C. Davy, W. Chen, F. Agostini, F. Skoczylas, et X. Bourbon (2009), Experimental evidence of a moisture clog effect in cement-based materials under temperature, *Cement and Concrete Research*, 39(12), 1139 – 1148, doi : 10.1016/j.cemconres.2009.07.015. [22](#)
- Collet, F., F. Achchaq, K. Djellab, L. Marmoret, et H. Beji (2011), Water vapor properties of two hemp wools manufactured with different treatments, *Construction and Building Materials*, 25, 1079–1085. [9](#), [33](#), [34](#)

-
- Crank, J. (1975), *The mathematics of diffusion (2nd edition)*, Oxford Science Publication, Oxford. 28, 56, 111
- Crausse, P., J. P. Laurent, et B. Perrin (1996), Influence des phénomènes d'hystérésis sur les propriétés hydriques de matériaux poreux, *Rev. Gen. Therm.*, 35, 95–106. 35
- Dana, E., et F. Skoczylas (1999), Gas relative permeability and pore structure of sandstones, *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences*, 36, 613–625. 26, 46, 47
- Dana, E., et F. Skoczylas (2002), Experimental study of two-phase flow in three sandstones. ii. capillary pressure curve measurement and relative permeability pore space capillary models, *International Journal of Multiphase Flow*, 28(12), 1965 – 1981. 101
- Darcy, H. (1856), *Les fontaines publiques de la ville de Dijon*, V. Dalmont, Paris. 26
- Dario, C. (1984), Condensation-evaporation cycles in pore and capillary systems according to the kelvin model, *Water, Air, & Soil Pollution*, 21, 151–159. 35
- Davy, C. A., F. Skoczylas, J.-D. Barnichon, et P. Lebon (2007), Permeability of macro-cracked argillite under confinement : Gas and water testing, *Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C*, 32(8-14), 667 – 680. 27
- Duan, Z., F. Agostini, J. Liu, F. Skoczylas, T. Dubois, et J.-P. Dubois (2011), In situ concrete structures moisture measurement using a pulse test method, in *Proceeding of International RILEM Conference on Advance in Construction Materials Through Science and Engineering*. 22
- Durner, W. (1994), Hydraulic conductivity estimation for soils with heterogeneous pore structure, *Water Resources Research*, 32, 211–223. 96
- El-Dieb, A. S., et R. D. Hooton (1995), Water-permeability measurement of high performance concrete using a high-pressure triaxial cell, *Cement and Concrete Research*, 25, 1199–1208. 74
- Espinosa, R. M., et L. Franke (2006), Inkbottle pore-method : Prediction of hygroscopic water content in hardened cement paste at variable climatic conditions, *Cement and Concrete Research*, 36, 1954–1968. 36
- Feldman, R. F. (1968), Sorption and length-change scanning isotherms of methanol and water on hydrated portland cement, in *15th International symposium on the chemistry of cement*, pp. 53–66. 12, 101
- Feldman, R. F. (1986), Pore structure, permeability and diffusivity as related to durability, in *8th International Congress on the Chemistry of Cement*, pp. 336–356. 35, 39
-

- Feldman, R. F., et P. J. Sereda (1970), A new model for hydrated portland cement and its practical implications, *Eng. J. Can*, 53, 53–69. [12](#), [35](#), [101](#)
- Feyen, J., D. Jacques, A. Timmerman, et J. Vanderborght (1998), Modelling water flow and solute transport in heterogeneous soils : A review of recent approaches, *Journal of Agricultural Engineering Research*, 70, 231–256. [96](#)
- Galvin, K. P. (2005), A conceptually simple derivation of kelvin equation, *Chemical Engineering Science*, 60, 4659–4660. [96](#)
- Gerke, H. H., et M. T. van Genuchten (1993), A dual-porosity model for simulating the preferential movement of water and solutes in structured porous media, *Water Resources Research*, 29, 305–319. [96](#)
- Goual, M. S., A. Bali, F. de Barquin, R. M. Dheilily, et M. Quéneudec (2006), Isothermal moisture properties of clayed cellular concretes elaborated from clayey waste, cement and aluminium powder, *Cement and Concrete Research*, 36, 1768–1776. [33](#), [36](#), [94](#)
- Granet, S. (2009), Modélisations thhm généralités et algorithmes, *Document Aster*, R7.01.10, 1–31. [115](#)
- Granet, S. (2011a), Modèles de comportement thhm, *Document Aster*, R7.01.11, 1–55. [117](#)
- Granet, S. (2011b), Notice d’utilisation du modèle thm, *Document Aster*, U2.04.05, 1–50. [116](#), [117](#)
- Grasley, Z. C., D. A. Lang, M. D. D’Ambrosia, et V. C. Salvador (2006), Relative humidity in concrete, *Concrete International*, 28, 51–57. [9](#), [30](#), [31](#), [73](#)
- Greenspan, L. (1977), Humidity fixed points of binary saturated aqueous solutions, *Journal of Research, National Bureau of Standards*, 81A, 89–96. [29](#), [49](#)
- Hanzic, L., L. Kosec, et I. Anzel (2010), Capillary absorption in concrete and the lucas-washburn equation, *Cement & Concrete Composites*, 32, 84–91. [38](#), [89](#)
- Ho, C. K., et S. W. Webb (2006), *Gas transport in porous media, theory and application of transport in porous media*, Springer, Netherlands. [26](#)
- Hu, J., et P. Stroeve (2003), Application of image analysis of assessing critical pore size for permeability prediction of cement paste, *Image Analysis & Stereology*, 22, 97–103. [39](#)
- IAEA (2010), *International status and prospects of nuclear power*, International atomic energy agency, Vienna (Austria). [21](#)

- Ishida, T., K. Maekawa, et T. Kishi (2007), Enhanced modeling of moisture equilibrium and transport in cementitious materials under arbitrary temperature and relative humidity history, *Cement and Concrete Research*, 37, 565–578. [10](#), [36](#), [37](#)
- Kim, J. K., et C. S. Lee (1999), Moisture diffusion of concrete considering self-desiccation at early ages, *Cement and Concrete Research*, 29, 1921–1927. [94](#)
- Klingenberg, L. J. (1941), The permeability of porous media to liquids and gases, in *Drilling and production practice*, pp. 200–213. [48](#)
- Koishi, M., C. Rajesh, et K. Toshiharu (1999), *Modelling of concrete performance : Hydration, microstructure formation, and mass transport*, E&FN Spon, New York. [98](#)
- Krus, M. (1996), *Moisture transport and storage coefficients of porous mineral building materials. Theoretical principles and new test methods*, Fraunhofer IRB Verlag, Stuttgart. [10](#), [35](#)
- Kumar, C. P. (2002), Modelling of unsaturated flow, in *National conference on "Modern Trends in Water Resources Development and Environmental Management"*, pp. 1–9. [95](#)
- Kumar, R., et B. Bhattacharjee (2004), Assessment of permeation quality of concrete through mercury intrusion porosimetry, *Cement and Concrete Research*, 34, 321–328. [10](#), [40](#)
- Li, K., et R. N. Home (2002), Calculation of steam-water relative permeability using capillary pressure data, in *Twenty-Seventh Workshop on Geothermal Reservoir Engineering*. [103](#)
- Li, K., C. Li, et Z. Chen (2009), Influential depth of moisture transport in concrete subject to drying-wetting cycles, *Cement & Concrete Composites*, 31, 693–698. [94](#)
- Lion, M. (2004), Influence de la température sur le comportement poromécanique du hydraulique d'une roche carbonatée et d'un mortier. études expérimentales, Thèse, Ecole Centrale de Lille. [26](#), [48](#)
- Lockington, D., J. Parlange, et P. Dux (1999), Sorptivity and the estimation of water penetration into unsaturated concrete, *Materials and Structures*, 32, 342–347. [114](#)
- Loosveldt, H., Z. Lafhaj, et F. Skoczylas (2002), Experimental study of gas and liquid permeability of a mortar, *Cement and Concrete Research*, 32(9), 1357 – 1363. [22](#), [27](#)
- Martys, N. S., et C. F. Ferraris (1997), Capillary transport in mortars and concrete, *Cement and Concrete Research*, 27, 747–760. [11](#), [39](#), [88](#), [90](#)

- Mehta, P. K., et P. J. M. Monteiro (2006), *Concrete-Microstructure, properties, and materials (3rd edition)*, McGraw-Hill, United States. [10](#), [33](#), [35](#), [59](#), [60](#)
- Mitkov, I., D. M. Tartakovsky, et C. Larrabee Winter (1998), Dynamics of wetting fronts in porous media, *Phys. Rev. E*, *58*, 5245–5248. [114](#)
- Monlouis-Bonnaire, J. P., J. Verdier, et B. Perrin (2004), Prediction of the relative permeability to gas flow of cement-based materials, *Cement and Concrete Research*, *34*, 737–744. [11](#), [60](#), [61](#), [62](#)
- Mualem, Y. (1976), New model for predicting hydraulic conductivity of unsaturated porousmedia, *Water Resour. Res.*, *12*, 513–522. [103](#)
- Muskat, M., et R. D. Wyckoff (1937), *The flow of homogeneous fluids through porous media*, McGraw-Hill, United States. [26](#)
- Ngnepieda, P., F. X. L. Dimet, A. Boukong, et G. Nguetseng (2002), Identification de paramètres : une application à l'équation de richards, *ARIMA*, *1*, 127–157. [95](#)
- Olchitzky, E. (2002), Couplage hydromécanique et perméabilité d'une argile gonflante non saturée sous sollicitations hydriques et thermiques - courbe de sorption et perméabilité à l'eau, Thèse, Ecole Nationale des Ponts et Chaussées. [111](#)
- Pavlik, Z., J. Zumar, M. Pavlikova, M. Jerman, et R. Cerny (2011), A transient method for determination of water vapour diffusion coefficient of building materials as function of relative humidity, in *NSB 2011 9th Nordic Symposium on Building Physics*. [10](#), [57](#), [58](#)
- Pellicer, J., V. Garcia-Morales, et M. J. Hernandez (2000), On the demonstration of the young-laplace equation in introductory physics courses, *Transactions, American Geophysical Union*, *38*, 126–129. [37](#)
- Philip, J. R., et D. A. Vries (1957), Moisture movement in porous materials under temperature gradients, *Physics Education*, *38*, 222–232. [94](#)
- Powers, T. C. (1958), Structure and physical properties of hardened portland cement paste, *Journale of the American Ceramic Society*, *41*, 1–6. [101](#)
- Poyet, S. (2009), Experimental investigation of the effect of temperature on the first desorption isotherme of concrete, *Cement and Concrete Research*, *39*, 1052–1059. [10](#), [49](#), [50](#)
- Pradhan, B., M. Nagesh, et B. Bhattacharjee (2005), Prediction of the hydraulic diffusivity from pore size distribution of concrete, *Cement and Concrete Research*, *35*, 1724–1733. [40](#)

-
- Purcell, W. R. (1949), Capillary pressures - their measurement using mercury and the calculation of permeability therefrom, *Petroleum Transactions*, 186, 39–48. [103](#)
- Ranaivomanana, H., J. Verdier, A. Sellier, et X. Bourdon (2011), Toward a better comprehension and modeling of hysteresis cycles in the water sorption–desorption process for cement based materials, *Cement and Concrete Research*, 41, 817–827. [36](#)
- Richards, L. A. (1931), Capillary conduction of liquids through porous mediums, *Journal of Applied Physics*, 1, 318–335. [94](#)
- Rougelot, T. (2008), Etude expérimentale multi-échelles des couplages hydriques, mécaniques et chimiques dans les matériaux cimentaires, Thèse, Université Lille 1 - Sciences et Technologies. [59](#)
- Rucker-Gramm, P., et R. Beddoe (2010), Effect of moisture content of concrete on water uptake, *Cement and Concrete Research*, 40(1), 102 – 108. [91](#)
- Tanikawa, W., et T. Shimamoto (2009), Comparison of klinkenberg-corrected gas permeability and water permeability in sedimentary rocks, *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences*, 46, 229–238. [27](#)
- Tata, S., et K. Watanabe (2003), Dynamic determination of sorption isotherm of cement based materials, *Cement and Concrete Research*, 33, 1465–1471. [56](#)
- Thomson, W. (1871), On the equilibrium of a vapour at a curved surface of liquid, *Phil. Mag.*, 42, 448–452. [96](#)
- Tranle, A. D. (2010), Etudes des transferts hygrothermiques dans le béton de chanvre et leur application au bâtiment, Thèse, Université de Reims Champagne-Ardenne. [33](#)
- Tsivilis, S., J. Tsantilas, G. Kakali, E. Chaniotakis, et A. Sakellariou (2005), The permeability of portland limestone cement concrete, *Cement and Concrete Research*, 35, 2271–2277. [27](#)
- V. Picandet, A. K., G. Bastian (2008), Compared imbibitions of ordinary and high performance concrete with null or positive water pressure head, *Cement and Concrete Research*, 38, 772–782. [10](#), [40](#), [41](#)
- van Genuchten, M. T. (1980), A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils, *Soil Science Society of America Journal*, 44, 1892–1898. [60](#), [96](#)
- Veronique, et Baroghel-Bouny (2007), Water vapour sorption experiments on hardened cementitious materials : Part i : Essential tool for analysis of hygral behaviour and its relation to pore structure, *Cement and Concrete Research*, 37(3), 414 – 437. [35](#)
-

BIBLIOGRAPHIE

Wu, Y.-S., K. Pruess, et p. Persoff (1998), Gas flow in porous media with klinkenberg effects, *Transport in Porous Media*, 32, 117–137. [48](#)

Zouloaga, P., M. Ordonez, M. W. Saaltink, et M. Castellote (2009), Capillary in concrete disposal vaults dan its influence in the behavior of isolation barriers at el cabril low and intermediate level radioactive waste disposal facility in spain -9015, in *WM2009 Conference*. [10](#), [35](#), [36](#)

Annexe A

Le code de la méthode des moindres carrés

On mesure un vecteur de valeurs y_1, y_2, \dots, y_n correspondantes à x_1, x_2, \dots, x_n et on estime la relation entre y et x par une fonction $y = f(x, a_1, a_2, a_3, \dots)$ où a_1, a_2, a_3, \dots sont les constantes inconnues. Pour déterminer ces constantes, on essaie différentes valeurs des paramètres a_1, a_2, a_3, \dots et on calcule la somme de la différence au carré entre y calculé et y mesuré par

$$C = \sum_{i=1}^n [y_i - f(x_i, a_1, a_2, a_3, \dots)]^2 \quad (\text{A.1})$$

Enfin on applique les valeurs $a_1^*, a_2^*, a_3^*, \dots$ qui donne le plus faible C . Ceci est la méthode des moindres carrés. Théoriquement, on peut obtenir une série d'équations, qui s'emploient à résoudre tous les paramètres, en supposant que

$$\frac{\partial C}{\partial a_k^*} = 0 \quad (\text{A.2})$$

où $k = 1, 2, 3, \dots$

La méthode des moindres carrés est plusieurs fois utilisée dans ce mémoire de thèse. Mais, les modèles sont souvent non-linéaire et il est difficile de trouver les solutions analytiques avec l'équation [A.2](#). Donc, on écrit un code à chercher les moindres carrés en essayant directement différentes valeurs des paramètres dans l'équation [A.1](#). Le code ci-dessous qu'on présente comme un exemple sert à déterminer les deux paramètres p_r et n dans le modèle de van Genuchten par la méthode des moindres carrés.

Code écrit par Fortran :

```
1 program datafit
2
3 !C'est le code à déterminer les deux paramètres pr et n dans le modèle de van Genuchten. La méthode des moindres carrés est appliquée. La saturation et l'humidité relative, obtenues par les essais de sorption sous différentes humidités relatives, sont les données d'entrée.
4
5 implicit none
6 integer , parameter :: rkind=selected_real_kind(11,50)
7 !Déclaration de précision.
8
9 integer , parameter :: ndata=8,ncir=100
10 !ndata est le nombre de données d'entrée.
11 !ncir est le nombre de subdivisions des valeurs des paramètres.
12
13 real , parameter :: ini1=1.1,ini2=2.5d7,ini3=0.0,ini4=0.0
14 !ini1 est la valeur initiale du paramètre n.
15 !ini2 est la valeur initiale du paramètre pr.
16 !ini3 et ini4 sont les valeurs initiales du troisième paramètre et quatrième paramètre.
17 !Dans le cas du modèle de van Genuchten,les 2 paramètres ini1 et ini2 ne sont pas utilisés.
18 !En fait, 4 paramètres au maximum peuvent être déterminés dans ce code. Par exemple, on peut déterminer les 3 paramètres dans le double-modèle du chapitre VI par ce code.
19
20 real , parameter :: inc1=0.01
21 real , parameter :: inc2=1.0d5
22 real , parameter :: inc3=0.002
23 real , parameter :: inc4=0.01
24 !Définition d'incrément des paramètres.
25
26 integer :: m,n,s,t,p
27 !m,n,s,t,p sont nombres à compter les cycles de calcul.
28 real(kind=rkind)::sum,delta,base,mid1
29 real(kind=rkind)::para1,para2,para3,para4
30 real(kind=rkind)::pmid1,pmid2,pmid3,pmid4
31 !Les 12 paramètres ci-dessus sont les variables intermédiaires dans le calcul.
32 !Entre eux, sum est la somme de carré de la différence entre la saturation calculée et la saturation mesurée.
33 real(kind=rkind),dimension(ndata)::xx,yy
```

```

34 !xx est le vecteur des valeurs de l'humidité relative.
35 !yy est le vecteur des valeurs de la saturation mesurée.
36
37 open (11, file='input_HR_Sw.txt', status='old')
38 do m=1,ndata
39     read (11,*)xx(m),yy(m)
40     write (*,*)xx(m),yy(m)
41 end do
42 close (11)
43 !Entrée des données expérimentales.
44
45 sum=0.0
46 delta=1.0
47 base=1.0
48 pmid1=0.0
49 pmid2=0.0
50 pmid3=0.0
51 pmid4=0.0
52 !Initialisation des variables intermédiaires.
53
54 do m=1,ncir
55     para1=ini1+real(m-1)*inc1
56     !Cycles de calcul du premier paramètre.
57     do n=1,ncir
58         para2=ini2+real(n-1)*inc2
59         !Cycles de calcul du deuxième paramètre.
60         do s=1,1
61             para3=ini3+real(s-1)*inc3
62             !Cycles de calcul du troisième paramètre.
63             do t=1,1
64                 para4=ini4+real(t-1)*inc4
65                 !Cycles de calcul du quatrième paramètre.
66                 sum=0.0
67                 do p=1,ndata
68                     mid1=1.0-1.0/para1
69                     mid1=1.0/(1.0+(-1.0*log(xx(p))*8.3144*293.0/1.8e &
70                         & -5/para2)**para1)**mid1
71                     !Calcul de la saturation selon le modèle de van Genuchten.
72                     mid1=yy(p)-mid1

```

```

73         !Calcul de la différence entre la saturaiton calculée et la saturaiton mesurée.
74         sum=sum+mid1*mid1
75         !Calcul du carré d'erreur.
76     end do
77
78     if (m==1.and .n==1.and .s==1.and .t==1)then
79         base=sum
80         pmid1=para1
81         pmid2=para2
82         pmid3=para3
83         pmid4=para4
84         if (base < 1.0e-10)then
85             write (*,*) "The_base_is_0!"
86             exit
87         end if
88     end if
89     sum=sum/base
90     if (sum<delta)then
91         delta=sum
92         pmid1=para1
93         pmid2=para2
94         pmid3=para3
95         pmid4=para4
96     end if
97     !Détermination des valeurs des paramètres qui donnent la moindre carré d'er-
98     reur.
99     end do
100 end do
101 end do
102 write (*,*) "The_program_has_completed_" ,m, "/" ,ncir
103 end do
104
105 write (*,*) "The_base_is_" ,base
106 write (*,*) "The_delta_is_" ,delta
107 write (*,*) "The_parameters_are_" ,pmid1, " ,_" ,pmid2, &
108         & " ,_" ,pmid3, " ,_" ,pmid4
109 !Imprimer les valeurs finales des paramètres.
110

```

111 end program datafit

Annexe B

Effet de la forme de section et effet de la tortuosité sur l'imbibition capillaire du béton

B.1 Rayon équivalent d'un tube avec section non-circulaire

Dans le test d'intrusion de mercure et dans l'équation de Hagen-Poiseuille, on suppose que la section de passage de fluide dans le béton est circulaire. Mais la section est toujours actuellement non-circulaire et il faut transformer la section à une forme circulaire, voir Figure B.1. Cependant les principes de transformation dans le test d'intrusion de mercure et dans l'équation de Hagen-Poiseuille sont différents.

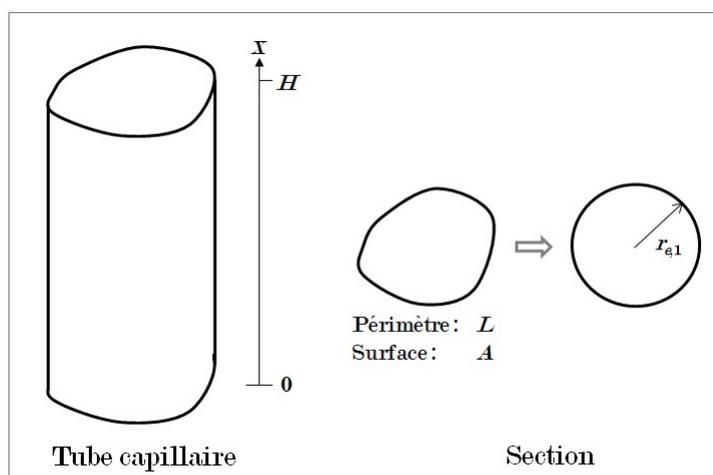


FIGURE B.1 – Transformation de section non-circulaire à section circulaire

B.1.1 Rayon équivalent dans le test d'intrusion de mercure

Dans le test d'intrusion de mercure, le rayon équivalent est déterminé par

$$r_{e,1} = \frac{2\gamma \cos\theta}{p_c} \quad (\text{B.1})$$

où $r_{e,1}$ est le rayon équivalent, γ est la tension superficielle, θ est l'angle de contact, p_c est la pression capillaire.

Pour une section non-circulaire, la pression capillaire est donnée par

$$p_c = \frac{\gamma L \cos\theta}{A} \quad (\text{B.2})$$

où L est le périmètre de la section, A est la surface de la section.

Donc, selon les équations B.1 et B.2, le rayon équivalent est donné par

$$r_{e,1} = 2 \frac{A}{L} \quad (\text{B.3})$$

B.1.2 Rayon équivalent dans l'équation de Hagen-Poiseuille

L'équation de Hagen-Poiseuille décrit l'écoulement laminaire de liquide visqueux dans un long tube cylindrique. L'équation d'équilibre des forces est donnée par

$$-\frac{\partial p}{\partial x} dx 2\pi s ds - \mu 2\pi s dx \frac{\partial v}{\partial r} \Big|_s + \mu 2\pi (s + ds) dx \frac{\partial v}{\partial r} \Big|_{s+ds} = 0 \quad (\text{B.4})$$

où p est la pression de fluide, s est le rayon d'une couche de fluide (Figure B.2), μ est la viscosité de fluide, x est la coordonnée selon la direction de longueur de tube, v est la vitesse d'écoulement, r est la coordonnée selon la direction de rayon (Figure B.2).

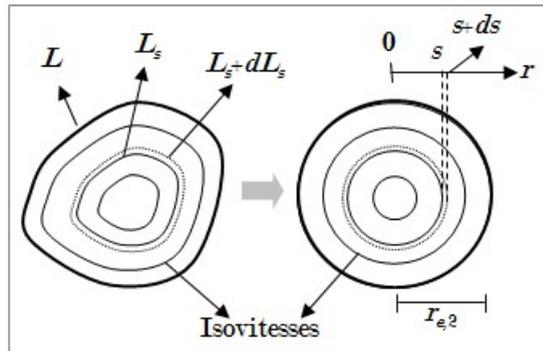


FIGURE B.2 – Transformation de section non-circulaire à section circulaire

Ainsi, quand on transforme une section non-circulaire à une section circulaire, on doit

assurer que

$$2\pi s ds = [surface\,entre\,L_s\,et\,(L_s + dL_s)] \quad (B.5)$$

$$2\pi s = L_s \quad (B.6)$$

où L_s est le périmètre d'une couche d'écoulement à la même vitesse que celle à rayon égal à s dans la section circulaire (Figure B.2).

Selon l'équation B.6 le rayon équivalent de cette section non-circulaire est donnée par

$$r_{e,2} = \frac{L}{2\pi} \quad (B.7)$$

B.1.3 Discussions

Si la section du tube est circulaire, les deux rayons équivalents seront les mêmes et égaux au vrai rayon. Sinon, on obtiendra deux rayons équivalents différents. Donc, si le résultat du test d'intrusion de mercure et l'équation de Hagen-Poiseuille sont tous utilisés dans une analyse, l'effet de la différence de rayon équivalent doit être considéré.

B.2 Equation de Lucas-Washburn considérant l'effet de la tortuosité et l'effet de la circularité de section

L'équation de Lucas-Washburn qui décrit l'imbibition capillaire dans un tube cylindrique se base sur l'équation de Hagen-Poiseuille. Donc, le rayon dans l'équation originale de Lucas-Washburn est le rayon équivalent $r_{e,2}$. Selon l'équation I.12, le résultat du test d'intrusion de mercure et l'équation de Lucas-Washburn sont tous utilisés pour décrire la sorption capillaire d'un béton. Donc, on doit considérer l'effet de la différence de rayon équivalent sur la description de la sorption capillaire du béton. Par ailleurs, la tortuosité du tube influence aussi l'imbibition capillaire. Donc, l'effet de la différence de rayon équivalent (ou l'effet de la circularité de section) et l'effet de tortuosité sur l'imbibition capillaire dans un tube courbé et dans le béton contenant tubes courbés sont ensuite discutés.

B.2.1 Equation de Lucas-Washburn d'un tube courbé

Lorsque un côté d'un tube courbé est immergé dans l'eau, l'imbibition capillaire se fait par la capillarité, voir Figure B.3. Selon l'équation de Hagen-Poiseuille, cet écoulement capillaire peut être décrit par

$$\frac{\tau dh}{dt} = \frac{r_{e,2}^2 p_c}{8\mu \tau h} \quad (B.8)$$

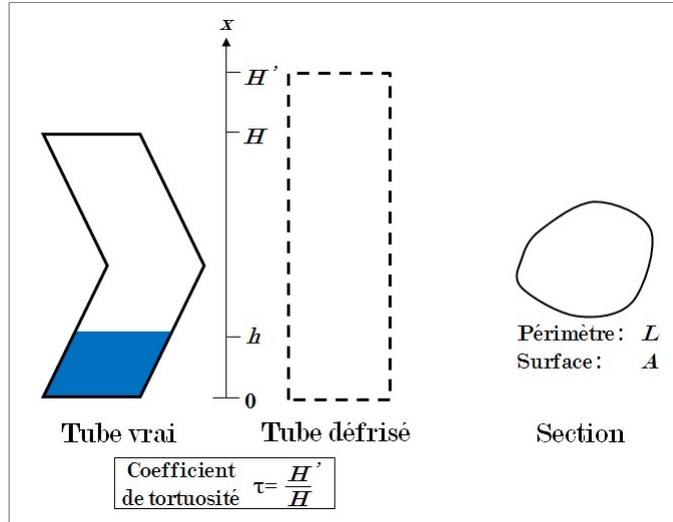


FIGURE B.3 – Transformation de section non-circulaire à section circulaire

où τ est le coefficient de tortuosité et correspond au ratio de la hauteur du tube à la longueur actuelle du tube (Figure B.3), h est la hauteur de la colonne d'eau dans le tube, $r_{e,2}$ est le rayon équivalent dans l'équation de Hagen-Poiseuille, μ est la viscosité de liquide, p_c est la pression capillaire.

L'intégration de l'équation B.8 donne une forme modifiée de l'équation de Lucas-Washburn

$$h = \xi \sqrt{\frac{r_{e,1} \gamma \cos \theta}{2\mu}} t \quad (\text{B.9})$$

$$\xi = \frac{\sigma}{\tau} \quad (\text{B.10})$$

$$\sigma = \frac{r_{e,2}}{r_{e,1}} = \frac{L^2}{4\pi A} \quad (\text{B.11})$$

où σ est le paramètre qui reflète l'effet de la différence de rayon équivalent et est égal ou supérieur à 1, τ est le paramètre qui correspond à l'effet de la tortuosité de tube et est égal ou supérieur à 1, $\xi = \sigma/\tau$ est le paramètre qui reflète l'effet combiné de la circularité de section et la tortuosité de tube. $\xi = 1$ indique que : (1) la section est circulaire et les tubes sont droits (2) ou les deux effets s'annulent. $\xi > 1$ indique que l'effet de la circularité de section est prédominant. Par contre, $\xi < 1$ indique que l'effet de la tortuosité est prédominant.

B.2.2 Sorption capillaire d'un béton contenant tubes courbés

Si on suppose que les pores dans le béton se forment par des tubes courbés en différents rayons équivalents ($r_{e,i}$), selon les équations I.12 et IV.2 la sorption capillaire du béton

est donnée par

$$i = \beta\sqrt{t} \quad (\text{B.12})$$

$$\beta = \xi\varphi \sum_{i=1}^N F(r_i)\sqrt{r_{e,i}} \quad (\text{B.13})$$

où i est la sorption capillaire du béton, β est le coefficient de sorption capillaire, φ est la porosité du béton, $F(r_i)$ est la fraction volumique des pores dont le rayon est $r_{e,i}$ et elle déterminée par le test d'intrusion de mercure.

On applique $\xi = 0,005$ pour le béton CEM I et $\xi = 0,003$ pour le béton CEM V et on peut simuler l'imbibition capillaire des deux bétons avec l'équation B.12, voir Figure IV.13. Les valeurs de ξ sont beaucoup plus faibles que 1 et ceci indique que l'effet de tortuosité est prédominant pour les deux bétons.

B.2.3 Discussions

Dans la dérivation des équations B.12 et B.13, on suppose aussi que tous les tubes dans le béton ont la même circularité de section et la même tortuosité. Par ailleurs, l'effet de "inkbottle" n'est pas considéré dans l'analyse ci-dessus. En d'autres mots, bien qu'on ait essayé d'ajouter l'effet de circularité et l'effet de tortuosité dans la description d'imbibition capillaire, cette description est encore un simple modèle par rapport à la vraie distribution de pores dans le béton.

Remerciements

Je tiens d'abord à remercier mon directeur de thèse Frédéric Skoczylas pour son soutien constant, sa grande disponibilité et ses précieux conseils tout au long de ma thèse.

Je tiens à exprimer ma très sincère reconnaissance envers Monsieur Jianfu SHAO, qui m'a fait l'honneur d'accepter la présidence de mon jury de thèse, qu'il trouve ici l'expression de ma respectueuse gratitude. Je remercie également Madame Myriam CARCASSES et Monsieur Christophe GALLE qui ont accepté d'être rapporteurs de ce mémoire et Messieurs Jean TALANDIER et Franck AGOSTINI pour l'intérêt qu'ils ont porté à ce travail.

J'adresse un grand merci à Sylvie GRANET et Sophie CARIOU qui m'ont donné nombreux conseils sur la simulation numérique dans ce travail.

Je remercie tous les membres du laboratoire, Catherine DAVY, Thierry DUBOIS, Laurent LECONTE, Nadine DESSEYN et Marie-Claude WILLEMETZ, pour leur aide et leur amitié.

Je remercie aussi les doctorants du laboratoire. Merci à Sofia, Wei, Mazen, mes collègues de bureau pour tous les échanges que nous avons eu ; Merci à Xiaoting, Flore, Yixuan, Jaouad, Zhibo, Jiangfeng, Xiaojian, pour leur amitié.

Un grand merci à tous les amis, Hui, Jinlin, Dapeng, ... pour les bons moments partagés avec eux.

Merci à mes parents pour leur soutien permanent et pour m'avoir permis de poursuivre mes études si loin.

Enfin, je dédie cette thèse à ma femme Huarong, qui m'a supporté dans les bons comme les mauvais moments avec tout son amour.

Etude expérimentale de la perméabilité relative au gaz et à l'eau de matériaux cimentaires et simulation numérique du transfert d'eau du béton

Résumé

Les matériaux cimentaires sont largement utilisés dans les ouvrages de stockage de déchets radioactifs. L'activité de déchets et la présence d'eau dans les matériaux cimentaires contribuent à une importante production de gaz (hydrogène en particulier) qui amène de l'endommagement par excès de pression de l'ouvrage de stockage. Pour évaluer et prévoir ce phénomène, il est crucial d'avoir une connaissance précise des transferts de gaz et d'eau dans ces matériaux. Ce mémoire de thèse a été consacré à étudier expérimentalement la perméabilité relative au gaz et à l'eau des matériaux cimentaires partiellement saturés, et à simuler numériquement le transfert d'eau dans le béton.

La perméabilité relative d'un mortier de référence («mortier de référence») et d'un béton utilisé dans un centre de stockage de déchets radioactifs («béton de Soulaines») a été mesurée. La courbe de la perméabilité relative au gaz en fonction de la saturation en eau peut être modélisée par le modèle de van Genuchten-Mualem. La perméabilité intrinsèque au gaz du mortier de référence a un ordre de grandeur de 10^{-17}m^2 tandis que celle du béton est de l'ordre de grandeur de 10^{-18}m^2 . L'isotherme de sorption des deux matériaux a aussi été estimée par la simulation du processus de sorption sous humidité relative.

Une méthode de mesure de la perméabilité relative à l'eau de deux bétons CEM I et CEM V, qui seront utilisés dans un stockage profond, a été proposée par essayer d'isoler, dans l'écoulement partiellement saturé, ce qui relève de l'imbibition capillaire et de la perméation. Cependant les cinétiques des deux phénomènes sont très contrastées et les quantités d'eau mis en jeu n'ont pas permis d'exploiter cette approche. On a pu mettre en évidence la prépondérance de la capillarité sur la perméation lors du processus de

saturation du matériau. Par ailleurs, la perméabilité intrinsèque à l'eau de deux bétons est très faible et a un ordre de grandeur de 10^{-21}m^2 .

On a ensuite mesuré la sorption capillaire de deux bétons CEM I et CEM V. La courbe de sorption capillaire en fonction de racine du temps dévie de l'équation de Lucas-Washburn. A la même saturation en eau, la perméabilité relative au gaz de l'échantillon pré-traité par l'imbibition capillaire est plus faible que celle de l'échantillon pré-traité par adsorption sous humidité relative.

Un double-modèle de rétention a été proposé qui reproduit bien l'isotherme de sorption des bétons CEM I et CEM V. Avec le modèle de Purcell, le modèle de Burdine et le modèle de Mualem, la perméabilité relative au gaz et à l'eau de bétons CEM I et CEM V sont déduites. L'hystérésis de l'isotherme de sorption entraîne celle de la perméabilité relative à l'eau tandis que la perméabilité relative au gaz n'a pas d'hystérésis remarquable. Avec le double-modèle de rétention et les courbes de la perméabilité relative à l'eau, on a pu simuler le processus de sorption sous humidité relative en utilisant une propre perméabilité intrinsèque à l'eau, qui est dans le domaine de valeurs mesurées ; tandis qu'on n'a pas réussi à simuler l'imbibition capillaire à cause de la cinétique différente. Par ailleurs, avec un modèle de diffusion de saturation en eau, on a pu simuler l'essai de désorption sous humidité relative 50% et l'essai d'adsorption sous humidité relative 100% pendant une période de 5 semaines.

Mots clés : béton, perméabilité, capillarité, simulation

Experimental study on gas and water relative permeability of cementitious materials and numerical simulation of water transport of concrete

Abstract

Cementitious materials are widely used in the building of radioactive waste disposals. The activity of waste will lead to the radiolysis of water in porous materials and some gas will be produced (hydrogen in particular). This gas production can bring about damages by pressure excess in storage structure. In order to assess and predict this risk, it is crucial to study gas and water transfer in these materials. This dissertation was devoted to study gas and water relative permeability and transfer of water in partially saturated cementitious materials.

The gas relative permeability of a reference mortar and a concrete, which is used in the low and intermediate level waste storage center in Soulaines, has been measured. The gas relative permeability can be described by van Genuchten-Mualem model. The intrinsic gas permeability of reference mortar, has a magnitude of 10^{-17}m^2 and is 10 times bigger than that of concrete. Besides, the sorption isotherms of two materials has been estimated by the simulation of sorption process under relative humidity.

A method to measure water relative permeability of two concretes CEM I and CEM V, which will be used in the building of a underground disposal, has been proposed by trying to distinguish, in the partially saturated flow, the part due to permeation from the part of capillary adsorption. But the difficulty of isolating the part due to the permeation in the unsaturated flow shows that the flow of capillarity is predominant in unsaturated flow. Both concretes have a low water intrinsic permeability with a magnitude of 10^{-21}m^2 .

The capillary adsorption of concretes CEM I and CEM V has been measured. The capillary sorption curve deviates from Lucas-Washburn equation when capillary adsorption takes a long time (one month in our tests). At the same level of water saturation, the

gas relative permeability of sample pre-treated by capillary adsorption is less than that of sample pre-treated by adsorption in relative humidity.

A double retention model has been proposed and it can describe the sorption isotherm of two concretes CEM I and CEM V. With Purcell's model, Burdine's model and Mualem's model, the curves of gas and water relative permeability for two concretes are deducted. The hysteresis of sorption leads to the hysteresis of water relative permeability while there is not notable hysteresis of gas relative permeability. With double-retention model and water relative permeability expression, we can simulate sorption process under relative humidity by using a proper value of water intrinsic permeability which is in the domain of measured values. Besides, with saturation diffusion model, the desorption under relative humidity 50 % and the adsorption in relative humidity 100 % for a period of 5 weeks can be simulated.

Keywords : concrete, permeability, capillarity, simulation

