ECOLE NATIONALE SUPERIEURE
DES MINES DE SAINT-ETIENNE

N° d'ordre 60 CD

THESE

Présentée par

Claudine JACQUET

pour obtenir le titre de

DOCTEUR

DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE
ET DE L'ECOLE NATIONALE SUPERIEURE DES MINES DE SAINT-ETIENNE

(Spécialité : GENIE DES PROCEDES)

CARACTERISATION GEOMETRIQUE ET PROPRIETES DE TRANSPORT DE MILIEUX POREUX CONSOLIDES

Soutenue à Saint-Etienne le 17 octobre 1991

COMPOSITION du JURY

Monsieur	**D. BERNACHE-ASSOLANT**	**Président**
Messieurs	**D. BIDEAU** **M. RENAUD**	**Rapporteurs**
Messieurs	**C. GAUTHIER** **M. SOUSTELLE** **G. THOMAS**	**Examinateurs**

Thèse préparée au Département de Chimie-Physique des Processus Industriels

ECOLE NATIONALE SUPERIEURE
DES MINES DE SAINT-ETIENNE

N° d'ordre 60 CD

THESE

Présentée par

Claudine JACQUET

pour obtenir le titre de

DOCTEUR

DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE
ET DE L'ECOLE NATIONALE SUPERIEURE DES MINES DE SAINT-ETIENNE

(Spécialité : GENIE DES PROCEDES)

CARACTERISATION GEOMETRIQUE ET PROPRIETES DE TRANSPORT DE MILIEUX POREUX CONSOLIDES

Soutenue à Saint-Etienne le 17 octobre 1991

COMPOSITION du JURY

Monsieur	**D. BERNACHE-ASSOLANT**	**Président**
Messieurs	**D. BIDEAU** **M. RENAUD**	**Rapporteurs**
Messieurs	**C. GAUTHIER** **M. SOUSTELLE** **G. THOMAS**	**Examinateurs**

Thèse préparée au Département de Chimie-Physique des Processus Industriels

ECOLE NATIONALE SUPERIEURE DES MINES DE SAINT ETIENNE

Directeur	:	M. Philippe SAINT RAYMOND
Directeur délégué à la recherche	:	M. Michel DARRIEULAT
Directeur des études et de la formation	:	M. Jean-Pierre LOWYS
Secrétaire général	:	M. Jean.Claude PIATEK

PROFESSEURS DE 1ère CATEGORIE

MM.	BISCONDI	Michel	Matériaux
	COINDE	Alexandre	Economie
	DAVOINE	Philippe	Hydrogéologie
	FORMERY	Philippe	Mathématiques Appliquées
	GOUX	Claude	Matériaux
	LE COZE	Jean	Matériaux
	LOWYS	Jean-Pierre	Physique
	MATHON	Albert	Gestion
	PEROCHE	Bernard	Informatique
	PLA	Jean-Marie	Mathématiques
	RIEU	Jean	Matériaux
	SOUSTELLE	Michel	Génie des procédes
	VAUTRIN	Alain	Mécanique et Matériaux
	VERCHERY	Georges	Mécanique et Matériaux

PROFESSEUR DE 2ème CATEGORIE

M.	TOUCHARD	Bernard	Physique Industrielle

DIRECTEURS DE RECHERCHE

MM.	LESBATS	Pierre	Matériaux
	THEVENOT	François	Génie des Matériaux

MAITRES DE RECHERCHE

MM.	COURNIL	Michel	Chimie
	DRIVER	Julian	Matériaux
	GIRARDOT	Jean-Jacques	Informatique
	GUILHOT	Bernard	Génie des procédés
	GUY	Bernard	Géologie
	KOBYLANSKI	André	Matériaux
	LALAUZE	René	Génie des procédés
	LANCELOT	Francis	Génie Industriel-Biotechnologie
	MONTHEILLET	Frank	Matériaux
	THOMAS	Gérard	Génie des procédés
	TRAN MINH	Cahn	Génie Industriel-Biotechnologie

PERSONNALITES HABILITEES OU DOCTEURS D'ETAT

MM.	AIVAZZADEH	Sahram	Mécanique et Matériaux
	BIGOT	Jean-Pierre	Génie Industriel-Biotechnologie
	BRODHAG	Christian	Matériaux
	DECHOMETS	Roland	Stratégie du Développement
Mme.	GOEURIOT	Dominique	Matériaux
MM.	LONDICHE	Henry	Génie Industriel-Biotechnologie
	PIJOLAT	Christophe	Génie des procédés
Mme.	PIJOLAT	Michèle	Génie des procédés

PERSONNALITES EXTERIEURES A L'ECOLE AUTORISEES A ENCADRER DES THESES

M.	BENHASSAINE	Ali	Génie des procédés (Ecole des mines Ales))
	BOURGOIS	Jacques	Génie Industriel-Biotechnologie (Univ St Etienne)
	GRAILLOT	Didier	Ingénieur RHEA
	MAGNIN	Thierry	Matériaux (Univ Lille)
	VERGNAUD	Jean-Marie	Génie des procédés (Univ St Etienne)

INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE
G R E N O B L E

46 avenue F. Viallet - 38031 GRENOBLE Cedex -

Tél : 76.57.45.00

ANNEE UNIVERSITAIRE 1990

Président de l'Institut
Monsieur Georges LESPINARD

PROFESSEURS DES UNIVERSITES

ENSERG	BARIBAUD	Michel
ENSIEG	BARRAUD	Alain
ENSPG	BAUDELET	Bernard
INPG	BEAUFILS	Jean-Pierre
ENSERG	BLIMAN	Samuel
ENSHMG	BOIS	Philippe
ENSEEG	BONNETAIN	Lucien
ENSPG	BONNET	Guy
ENSIEG	BRISSONNEAU	Pierre
IUFA	BRUNET	Yves
ENSHMG	CAILLERI E	Denis
ENSPG	CAVAIGNAC	Jean-François
ENSPG	CHARTIER	Germain
ENSERG	CHENEVIER	Pierre
UFR PGP	CHERADAME	Hervé
ENSIEG	CHERUY	Arlette
ENSERG	CHOVET	Alain
ENSERG	COHEN	Joseph
ENSEEG	COLINET	Catherine
ENSIEG	CORNUT	Bruno
ENSIEG	COULOMB	Jean-Louis
ENSERG	COUMES	André
ENSIMAG	CROWLEY	James
ENSHMG	DARVE	Félix
ENSIMAG	DELLA DORA	Jean-François
ENSERG	DEPEY	Maurice
ENSPG	DEPORTES	Jacques
ENSEEG	DEROO	Daniel
ENSEEG	DESRE	Pierre
ENSERG	DOLMAZON	Jean-Marc
ENSEEG	DURAND	Francis
ENSPG	DURAND	Jean-Louis
ENSHMG	FAUTRELLE	Yves
ENSIEG	FOGGIA	Albert
ENSIMAG	FONLUPT	Jean
ENSIEG	FOULARD	Claude
UFR PGP	GANDINI	Alessandro
ENSPG	GAUBERT	Claude
ENSERG	GENTIL	Pierre
ENSIEG	GENTIL	Sylviane
IUFA	GREVEN	Hélène
ENSIEG	GUEGUEN	Claude
ENSERG	GUERIN	Bernard
ENSEEG	GUYO T	Pierre
ENSIEG	IVANES	Marcel
ENSIEG	JAUSSAUD	Pierre
ENSPG	JOST	Rémy
ENSPG	JOUBERT	Jean-Claude
ENSIEG	JOURDAIN	Geneviève
ENSIEG	LACOUME	Jean-Louis
ENSIEG	LADET	Pierre
ENSHMG	LESIEUR	Marcel
ENSHMG	LESPINARD	Georges
ENSPG	LONGEQUEUE	Jean-Pierre
ENSHMG	LORET	Benjamin
ENSEEG	LOUCHET	François
ENSEEG	LUCAZEAU	Guy
ENSIEG	MASSE	Philippe
ENSIEG	MASSELOT	Christian
ENSIMAG	MAZARE	Guy
ENSIMAG	MOHR	Roger
ENSHMG	MOREAU	René
ENSIEG	MORET	Roger
ENSIMAG	MOSSIERE	Jacques
ENSHMG	OBLED	Charles
ENSEEG	OZIL	Patrick
ENSEEG	PAULEAU	Yves
ENSIEG	PERRET	Robert
ENSHMG	PIAU	Jean-Michel
ENSERG	PIC	Etienne
ENSIMAG	PLATEAU	Brigitte
ENSERG	POUPOT	Christian
ENSEEG	RAMEAU	Jean-Jacques
ENSPG	REINISCH	Raymond
UFR PGP	RENAUD	Maurice
UFR PGP	ROBERT	André
ENSIMAG	ROBERT	François
ENSIEG	SABONNADIERE	Jean-Claude
ENSIMAG	SAUCIER	Gabriele
ENSPG	SCHLENKER	Claire
ENSPG	SCHLENKER	Michel
ENSERG	SERMET	Pierre
UFR PGP	SILVY	Jacques
ENSHMG	SIRIEYS	Pierre
ENSEEG	SOHM	Jean-Claude
ENSIMAG	SOLER	Jean-Louis
ENSEEG	SOUQUET	Jean-louis
ENSHMG	TROMPETTE	Philippe
ENSPG	VINCENT	Henri
ENSERG	ZADWORNY	François

.../...

SITUATION PARTICULIERE

PROFESSEURS D'UNIVERSITE

DETACHEMENT

ENSIMAG	LATOMBE	J.Claude	Détachement.....	21/10/1989
ENSHMG	PIERRARD	J.Marie	Détachement.....	30/04/1989
ENSIMAG	VEILLON	Gérard	Détachement.....	30/09/1990
ENSIMAG	VERJUS	J.Pierre	Détachement.....	30/09/1989
ENSPG	BLOCH	Daniel	Récteur à c/.....	21/12/1988

SURNOMBRE

INPG	CHIAVERINA	Jean	30/09/1989
ENSHMG	BOUVARD	Maurice...	30/09/1991
ENSEEG	PARIAUD	J.Charles	30/09/1991

.../...

PERSONNES AYANT OBTENU LE DIPLOME

d'habilitation à diriger des recherches

BECKER	M.	DANES	F.	GHIBAUDO	G.	MULLER	J.
BINDER	Z.	DEROO	D.	HAMAR	S.	NGUYEN TRONG	B.
CHASSERY	J.M.	DIARD	J.P.	HAMAR	R.	NIEZ	J.J.
CHOLLET	J.P.	DION	J.M.	LACHENAL	D.	PASTUREL	A.
COEY	J.	DUGARD	L.	LADET	P.	PLA	F.
COLINET	C.	DURAND	M.	LATOMBE	C.	ROGNON	J.P.
COMMAULT	C.	DURAND	R.	LE HUY	H.	ROUGER	J.
CORNUEJOLS	G.	GALERIE	A.	LE GORREC	B.	TCHUENTE	M.
COULOMB	J.L.	GAUTHIER	J.P.	MADAR	R.	VINCENT	H.
COURNIL	M.	GENTIL	S.	MEUNIER	G.	YAVARI	A.R.
DALARD	F.						

CHERCHEURS DU C.N.R.S.

DIRECTEURS DE RECHERCHE CLASSE 0

LANDAU	Ioan
NAYROLLES	Bernard

DIRECTEURS DE RECHERCHE 1ère CLASSE

ANSARA	Ibrahim	KRAKOWIAK	Sacha
CARRE	René	LEPROVOST	Christian
FRUCHARD	Robert	VACHAUD	Georges
HOPFINGER	Emile	VERJUS	Jean-Pierre
JORRAND	Philippe		

DIRECTEURS DE RECHERCHE 2ème CLASSE

ALEMANY	Antoine	JOUD	Jean-Charles
ALLIBERT	Colette	KAMARINOS	Georges
ALLIBERT	Michel	KLEITZ	Michel
ARMAND	Michel	KOFMAN	Walter
AUDIER	Marc	LEJEUNE	Gérard
BERNARD	Claude	MADAR	Roland
BINDER	Gilbert	MERMET	Jean
BONNET	Roland	MICHEL	Jean-Marie
BORNARD	Guy	MEUNIER	Jacques
CAILLER	Marcel	PEUZIN	Jean-Claude
CALMET	Jacques	PIAU	Monique
CHATILLON	Christian	RENOUARD	Dominique
CLERMONT	Jean-Robert	SENATEUR	Jean-Pierre
COURTOIS	Bernard	SIFAKIS	Joseph
DAVID	René	SIMON	Jean-Paul
DION	Jean-Michel	SUERY	Michel
DRIOLE	Jean	TEODOSIU	Christian
DURAND	Robert	VAUCLIN	Michel
ESCUDIER	Pierre	VENNEREAU	Pierre
EUSTATHOPOULOS	Nicolas	WACK	Bernard
GARNIER	Marcel	YONNET	Jean-Paul
GUELIN	Pierre		

.../...

PERSONNALITES AGREEES A TITRE PERMANENT A DIRIGER DES TRAVAUX DE RECHERCHE

(DECISION DU CONSEIL SCIENTIFIQUE)

ENSEEG	HAMMOU	Abdelkader
	MARTIN-GARIN	Régina
	SARRAZIN	Pierre
	SIMON	Jean-Paul
ENSERG	BOREL	Joseph
ENSIEG	DESCHIZEAUX	Pierre
	GLANGEAUD	François
	PERARD	Jacques
	REINISCH	Raymond
ENSHMG	ROWE	Alain
ENSIMAG	COURTIN	Jacques
C.E.N.G	CADET	Jean
	COEURE	Philippe
	DELHAYE	Jean-Marc
	DUPUY	Michel
	JOUVE	Hubert
	NICOLAU	Yvan
	NIFENECKER	Hervé
	PERROUD	Paul
	PEUZIN	Jean-Claude
	TAIEB	Maurice
	VINCENDON	Marc

Laboratoire extérieurs :

C.N.E.T.	DEVINE	Rodericq
	GERBER	Roland
	MERCKEL	Gérard
	PAULEAU	Yves

XXXXXXXXXXXXXXXX

Remerciements

Avant d'exposer cette étude, je tiens à remercier tous les membres du laboratoire qui m'ont témoigné leur sympathie et m'ont permis d'évoluer dans un environnement agréable.

Je remercie plus particulièrement :

- *Monsieur SOUSTELLE pour la confiance qu'il a su m'accorder et la délicate attention qu'il m'a portée en veillant au bon déroulement de cette étude,*
- *Monsieur THOMAS pour son soutien permanent et la grande disponibilité dont il a fait preuve à mon égard tout au long de cette étude,*
- *Messieurs MARCHAND et MISSIAEN qui m'ont été de précieux collaborateurs lors de la mise au point des différentes techniques expérimentales,*
- *MADAME SAINT-RAYMOND pour sa participation active et efficace à une partie de cette étude,*
- *Mademoiselle BERNE et Madame VERNAY pour leur grande disponibilité et le soin qu'elles ont apporté à la mise en forme du manuscrit.*

Je remercie également chacun des membres du jury d'avoir accepté de juger ce travail et contribué, grâce à des critiques et des conseils, à l'amélioration de la qualité de cette présentation.

Je remercie plus particulièrement :

- *Monsieur GAUTHIER et ses collègues du Laboratoire Central des Ponts et Chaussées qui ont réalisé les échantillons utilisés pour cette étude et ont toujours manifesté un grand intérêt pour mes travaux,*
- *Monsieur RENAUD pour sa grande disponibilité, ses conseils avisés et ses encouragements.*

SOMMAIRE

Introduction 1

1ERE PARTIE :

ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

A. Etude bibliographique concernant les écoulements 5

I. Présentation générale 5

1. Rappels théoriques 5

a. Equation de Navier-Stokes
b. Equation de Hagen-Poiseuille

2. Ecoulements dans les milieux poreux 6

a. Préliminaire
b. Nombre de Reynolds
c. Les régimes d'écoulement et leur domaine d'existence

3. Modélisation des écoulements 8

a. Classification des modèles
b. Critique des modèles

II. Principaux modèles d'écoulement dans le milieu poreux 11

1. Modèle d'Ergun 11

2. Modèle d'Ahmed et Sunada 14

3. Modèle de Comiti 15

III. Tortuosité - Facteur de formation 19

1. La tortuosité 19

2. Le facteur de formation 19

a. Définition
b. Loi d'Archie
c. Autres expressions

3. Tortuosité électrique - Tortuosité hydraulique 20

2EME PARTIE :

REALISATION ET CARACTERISATION DES EMPILEMENTS

B. Fabrication des échantillons 25

I. Procédés de fabrication des empilements consolidés 25

1. Procédé utilisé au laboratoire 25

a. Mise en forme
b. Traitement thermique
c. Caractéristiques géométriques de l'empilement

2. Procédé utilisé par le L.C.P.C. 27

a. Mise en forme
b. Traitement thermique
c. Caractéristiques géométriques de l'empilement

II. Echantillons étudiés 28

1. Choix du procédé de fabrication 28

2. Type d'échantillons analysés 29

C. Méthodes d'analyse de la texture poreuse 31

I. Porosimétrie au mercure 31

1. Principe 31

2. Grandeurs mesurées 31

a. La porosité
b. La distribution de taille des pores
c. La surface volumique

3. Conditions expérimentales 34

II. Analyse d'image 34

1. Principe 34

2. Grandeurs mesurées 35

a. Paramètres stéréologiques
α. Porosité
β. Surface spécifique
γ. Intégrale de courbure et courbure moyenne

b. **Distributions de taille**
α. Cas général
β. Distribution par ouverture linéaire
γ. Distribution par ouverture bidimensionnelle
δ. Exploitation des différentes distributions

3. **Protocole opératoire** 43

a. **Préparation des sections analysées**
α. Choix du plan de section
β. Imprégnation
γ. Polissage
δ. Optimisation du contraste

b. **Conditions expérimentales**
α. Dispositif expérimental
β. Choix du grossissement
γ. Masque de mesures

c. **Acquisition des images**
α. Cas des empilements de billes de 290-320 μm
β. Cas des empilements de billes de 50-62 μm

D. Résultats expérimentaux : présentation et interprétation 53

I. Caractérisation des billes de verre 53

1. **Distributions granulométriques** 53

a. **Distribution par ouverture linéaire**
b. **Distribution selon la méthode de Saltykov**

2. **Composition chimique** 54

II. Caractérisation des empilements consolidés par porosimétrie au mercure 54

1. **Caractérisation de l'espace poreux** 54

a. **Porosité**
b. **Distribution de taille de pores**
c. **Interprétation**

2. **Caractérisation de l'interface** 56

3. **Conclusion** 56

III. Caractérisation des empilements par analyse d'image 56

1. Caractérisation de l'espace poreux 57

a. Porosité
b. Distribution de taille de pores obtenue par ouverture linéaire
α. Intercept moyen et écart-type
β. Fonction étoile

c. Distribution de taille de pores obtenue par ouverture bidimensionnelle
d. Conclusion

2. Caractérisation de l'interface 62

a. Surface volumique
α. Résultats expérimentaux
β. Modélisation

b. Intégrale de courbure moyenne par unité de volume
c. Courbure moyenne
d. Conclusion

IV. Comparaison des deux méthodes de caractérisation 70

1. Porosité 70

2. Taille moyenne des pores 70

3. Surface volumique 71

V. Conclusion 72

3EME PARTIE :

CARACTERISATION DE QUELQUES PROPRIETES DE TRANSPORT DES EMPILEMENTS CONSOLIDES

E. La conductivité électrique 77

I. Mode opératoire 77

1. Principe 77

2. Dispositif expérimental 77

3. Conditions expérimentales 79

II. Variations du facteur de formation 79

1. Influence de l'électrolyte 79

2. Influence de la taille des billes de verre 79

3. Influence de la porosité 79

4. La tortuosité T 82

F. L'écoulement d'un liquide 83

I. Principe de mesures 83

1. Dispositif expérimental 83

a. Principe
b. Mise en place de l'échantillon
c. Automatisation du montage

2. Protocole opératoire 84

a. Acquisition des données
b. Traitement des données

3. Conditions expérimentales 85

a. Liquides utilisés
b. Température

II. Résultats expérimentaux 87

1. Présentation 87

2. Différents régimes d'écoulement 87

3. Influence de la nature du liquide 91

a. Cas des empilements consolidés de billes de diamètre D_{p_1} ($50 < D_{p_1} < 62$ µm)
b. Cas des empilements de billes de diamètre D_{p_2} ($290 < D_{p_2} < 320$ µm)
c. Conclusion

4. Comparaison de nos résultats à ceux proposés par la littérature 94

a. Le modèle d'Ergun
b. Le modèle de Comiti

5. Conclusion 99

Conclusion 101

Notations 103

Bibliographie 111

Annexes

Annexe 1 : Facteur de formation et tortuosité hydraulique 115

Annexe 2 : Porosimétrie au mercure 117

Annexe 3 : Analyse d'image 123

Annexe 4 : Principales opérations utilisées en analyse d'image 134

Annexe 5 : Méthode de Saltykov 143

Annexe 6 : Action de l'acide fluorhydrique sur les billes de verre 149

INTRODUCTION

Les propriétés d'écoulement d'un liquide à travers des milieux poreux jouent un rôle important dans certains phénomènes physiques ou physico-chimiques : écoulement de l'eau à l'intérieur du revêtement d'une chaussée, filtration des liquides, réaction solide-liquide comme celle rencontrée lors de la fabrication de la pâte à papier.

Ces propriétés dépendent à la fois de la nature du liquide et de la géométrie de l'espace poreux et en particulier de la taille des cavités. Cette dernière est elle-même liée à la structure granulaire du milieu étudié (taille et forme des particules, ...). Dans le cas où les particules constituant la structure granulaire sont discernables, le milieu poreux est dit "non consolidé" ; il est dit "consolidé" si les particules sont indiscernables.

En ce qui nous concerne, la caractérisation des propriétés d'écoulement d'un liquide à travers un milieu poreux consiste à :

- évaluer la chute de pression subie par le fluide lors de son passage à l'intérieur de ce milieu en fonction de sa vitesse

- choisir un modèle d'écoulement permettant d'expliciter, à l'aide de certaines grandeurs caractéristiques du liquide ou du milieu poreux, la loi expérimentale de variation de la chute de pression observée en fonction de la vitesse.

Des études antérieures ont été consacrées à la caractérisation des propriétés d'écoulement d'un liquide à l'intérieur d'un milieu poreux non consolidé : lit fixe de particules de forme et de taille variables. L'une d'entre elles, celle de Comiti, fait intervenir un facteur de tortuosité T qu'il est possible d'évaluer à partir des propriétés de conductivité électrique d'un électrolyte à l'intérieur du milieu poreux.

Nous nous proposons de caractériser les propriétés d'écoulement d'un liquide à travers un milieu poreux consolidé et ce en utilisant, si possible, les mêmes modèles d'écoulement que ceux envisagés dans le cas de milieux poreux non consolidés.

Afin de faciliter notre approche, nous avons restreint notre étude au cas idéal d'un écoulement unidirectionnel à l'intérieur d'un milieu poreux isotrope : l'espace granulaire est un empilement partiellement fritté de particules sphériques de même diamètre.

Le choix du matériau constituant les particules s'est porté sur le verre et ce pour plusieurs raisons essentielles : le frittage d'un tel matériau s'effectue à une température relativement faible (de l'ordre de 700°C) sous air et présente un faible coût.

Les paramètres retenus pour notre étude sont la nature du liquide, la taille des billes constituant l'espace granulaire et la porosité du milieu, ce dernier paramètre étant bien entendu fonction du degré de frittage de l'empilement.

Au cours de ce travail, nous avons évalué les propriétés d'écoulement et de conductivité électrique puis analysé la texture poreuse de chacun des milieux étudiés.

Dans ce mémoire, nous présenterons quelques rappels bibliographiques concernant les écoulements d'un liquide et la conductivité électrique d'un électrolyte à travers un milieu poreux.

Puis nous préciserons, dans une deuxième partie le mode de réalisation et la caractérisation géométrique par porosimétrie au mercure et analyse d'image des textures poreuses des milieux analysés.

Pour terminer, nous indiquerons, dans une troisième partie, les résultats relatifs aux propriétés de conductivité électrique d'un électrolyte et d'écoulement d'un liquide à l'intérieur d'un milieu poreux consolidé.

1ERE PARTIE :

ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

A. ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE CONCERNANT LES ECOULEMENTS

I. Présentation générale

1. Rappels théoriques

a. Equation de Navier-Stokes (N-S)

En théorie, l'écoulement d'un fluide peut être décrit macroscopiquement par la résolution simultanée de deux équations (Tritton p. 44) : l'équation de conservation de la matière ou de continuité et l'équation de Navier-Stokes.

Dans le cas où le fluide est incompressible, l'équation de continuité prend une forme simple : $\nabla \vec{u} = 0$ où $\vec{u}$ est la vitesse en un point $\mathcal{M}$ du fluide, alors que l'équation de Navier-Stokes est plus complexe. Cette dernière résulte de la loi de Newton, écrite par unité de volume, appliquée à un point du fluide. Vu son importance, nous la rappelons ici, sous sa forme vectorielle :

$$\frac{\partial \vec{u}}{\partial t} + (\vec{u}.\nabla)\,(\vec{u}) = \vec{F}_e - \frac{1}{\rho}\nabla P + \nu \nabla^2 \vec{u} \qquad \text{(A.I.1.)}$$

t est le temps ; ρ et ν sont respectivement la masse volumique et la viscosité cinématique du fluide ; F_e est la résultante des forces extérieures (champ de pesanteur, etc...) appliquée au point $\mathcal{M}$ considéré ; P est la pression hydrostatique en ce point.

Ainsi, l'écoulement d'un fluide à l'intérieur d'un milieu poreux peut être connu en résolvant les deux équations précédentes (conservation et N-S). En réalité, il n'est pas possible de trouver une solution à ce système d'équations.

b. Equation de Hagen-Poiseuille

L'équation de Navier-Stokes se simplifie considérablement dans le cas où l'écoulement du fluide s'effectue le long d'un tube circulaire de rayon r et de hauteur H (Scheidegger, p. 30). A l'état stationnaire, par intégration de l'équation de N-S, le débit volumique Q du fluide est relié aux grandeurs caractéristiques du tube par la relation de Hagen-Poiseuille (Scheidegger, p. 31) :

$$Q = \frac{\pi}{8}\frac{\Delta P}{H}\frac{r^4}{\eta} \qquad \text{(A.I.2.)}$$

ΔP représente la valeur absolue de la différence de pression hydrostatique entre les deux extrémités du tube ($\Delta P = |P_{sortie} - P_{entrée}|$) et $[\Delta P] = M.L^{-1}T^{-2}$, η est la viscosité dynamique du fluide, reliée à la viscosité cinématique par $\eta = \nu\rho$ et $[\eta] = M.L^{-1}T^{-1}$.

Une autre forme de cette équation, faisant intervenir la vitesse d'écoulement u, est souvent utilisée :

$$u = \frac{1}{32}\frac{\Delta P}{H}\frac{d^2}{\eta} \qquad \text{(A.I.3.)}$$

où d est le diamètre du tube.

L'expérience a montré que cette relation n'était pas vérifiée dans tous les cas de figure (Scheidegger, p. 32) mais seulement lorsque le nombre de Reynolds Re est inférieur à une valeur critique Re_c, avec :

$$Re = \frac{2\rho.r.u}{\eta} \qquad \text{(A.I.4.)}$$

L'écoulement est laminaire lorsque $Re < Re_c$ et turbulent si $Re > Re_c$. La valeur numérique de Re_c est de l'ordre de 2200 (Scheidegger) mais elle diminue très rapidement si les tubes circulaires ne sont plus droits.

Tritton (p. 237) est plus précis : il suggère que le passage du régime laminaire ($Re < Re_c$ et $Re_c = 2100$) au régime turbulent ($Re > 10^5$) s'effectue de façon continue par l'intermédiaire de différents états où le régime est instable temporairement (une petite perturbation n'engendre pas la turbulence).

Remarque : L'écoulement est laminaire lorsque les lignes de courant ne se croisent jamais, ce qui équivaut à dire dans un langage mathématique, que le vecteur vitesse est une fonction univoque du temps et de la position.
L'écoulement est turbulent lorsque sa description ne peut être réalisée correctement qu'au moyen d'outils statistiques.

2. Ecoulements dans les milieux poreux

a. Préliminaire

Le cas particulier décrit ci-dessus n'est pas adapté à la description des écoulements dans les milieux poreux. Ainsi, la caractérisation des écoulements dans de tels milieux ne peut être obtenue simplement et les résultats que nous possédons dans ce domaine ont très souvent été établis de façon semi-empirique. En effet, l'écoulement d'un fluide à travers un milieu poreux s'accompagne d'une perte d'énergie, généralement exprimée sous forme d'une chute de pression fonction de la vitesse du fluide. La caractérisation des écoulements consiste à relier la chute de pression observée à la vitesse du fluide à l'aide des caractéristiques du fluide et du milieu ; ce travail nécessite très souvent, mais pas toujours (comme nous le verrons au paragraphe A.I.3.a.), une modélisation soit de l'espace poreux, soit de l'écoulement.

Avant de décrire les différents modèles déjà envisagés, nous allons tout d'abord rappeler les différents régimes d'écoulement rencontrés dans les milieux poreux.

b. Nombre de Reynolds

Comme dans le cas de l'écoulement dans un tube (cf. § A.I.1.b.), le régime d'écoulement d'un fluide dans un milieu poreux dépend de la valeur prise par le nombre de Reynolds :

$$Re = \frac{2\rho\, u_0\, r}{\eta} \qquad \text{(A.I.4.)}$$

où u_0 est la vitesse du fluide après avoir traversé le milieu poreux mais où r est un rayon caractérisant le milieu poreux (Scheidegger, p. 158). Selon les auteurs, r peut être un rayon moyen de particules (Dullien, p. 162), ou rayon efficace "effective radius" de particules (Ergun, 1952) noté $R_p = 3/S_v'$ où S_v' est la surface de solide par unité de volume de solide, mais aussi une grandeur caractérisant l'espace poreux ; Scheidegger (p. 124) utilise le rayon hydraulique r_H égal au rapport du volume poreux et de la surface des pores alors que Carman (1937) définit un rayon équivalent de pore égal à 2 fois le rayon hydraulique.

c. Les régimes d'écoulement et leur domaine d'existence

Comme dans le cas d'un écoulement dans un tube circulaire (cf. § A.I.1.b.), différents régimes d'écoulement dans les milieux poreux ont été mis en évidence expérimentalement.

Scheidegger indique (p. 159) que pour de faibles valeurs du nombre de Reynolds $Re < Re_c$, le régime est laminaire linéaire ; dans ces conditions, et comme nous le verrons plus loin, la différence de pression aux bornes de l'échantillon poreux est proportionnelle à la vitesse du liquide après passage dans le milieu.

Remarque : Cette linéarité a été mise en évidence expérimentalement par Darcy ; elle a donné lieu à la loi de Darcy : $u_0 = k' (\Delta P/H)$ où k' est une constante caractéristique du milieu poreux et du fluide utilisés. Pour séparer l'influence de ces deux paramètres, la perméabilité k du milieu a été définie de telle sorte que :

$$u_0 = \frac{k}{\eta}\frac{\Delta P}{H} \qquad \text{(A.I.5.)}$$

Pour des valeurs du nombre de Reynolds supérieures à Re_c, cette proportionnalité n'est plus vérifiée : les forces d'inertie ne sont plus négligeables devant les forces de frottement. Certains diront, à tort, que dans ce domaine, le régime est turbulent. Mais, comme le souligne Scheidegger, il serait préférable de parler d'un domaine où l'écoulement est laminaire et non linéaire "non linear laminar flow". Ahmed et Sunada (1969) sont plus précis : ils montrent que, dans ce domaine, aucun phénomène de turbulence n'apparaît, mais seuls des effets de convection sont appréciables (cf. § A.II.2.). La valeur de Re_c peut varier considérablement selon la grandeur physique attribuée à r. D'après Scheidegger (p. 159), $0{,}1 < Re_c < 75$. Pour Childs et Collis-George : $Re_c = 1$.

Pour tenter d'obtenir une valeur plus précise de Re_c, certains auteurs ont supposé que Re_c dépendait de la porosité ϕ du milieu poreux. Selon Dullien (p. 163) :

$$Re_c = C.(1 - \phi) \qquad \text{(A.I.6.)}$$

où C est une constante réelle comprise entre 1 et 10. Ainsi, la limite supérieure de Re_c ne serait plus 75 mais 10 pour les milieux poreux.

Des études plus récentes menées par Dybbs et Edwards et mentionnées par Comiti (p. 16) font état de quatre régimes différents d'écoulement. Leurs travaux ont été réalisés sur des empilements de sphères et de cylindres avec des liquides variés. Ils ont mis en évidence :

- **un régime laminaire linéaire** pour des nombres de Reynolds inférieurs à 1 où les forces de frottement sont nettement supérieures aux forces d'inertie

- **un régime "permanent de type laminaire"** pour des nombres de Reynolds compris entre Re_c et 150 avec $1 < Re_c < 10$. Les forces d'inertie ne sont plus négligeables devant les forces de frottement

- **un régime "laminaire instable"** pour des nombres de Reynolds compris entre 150 et 300

- **un régime "non stationnaire"** pour des nombres de Reynolds supérieurs à 300.

Les différents régimes d'écoulement et leur domaine d'existence sont rapportés sur la figure A.I.1.

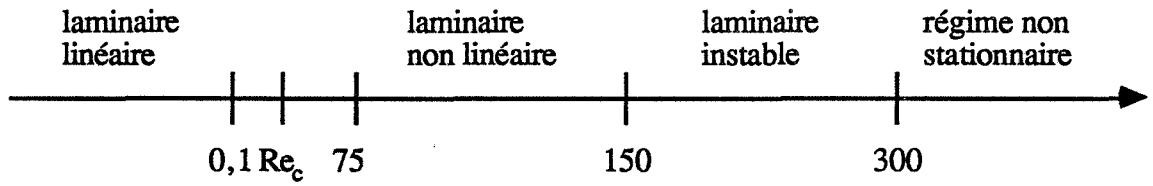


Figure A.I.1. : Les domaines d'existence des différents régimes d'écoulement d'un liquide à travers un milieu poreux.

De ce paragraphe, nous retiendrons que les écoulements dans les milieux poreux s'effectuent d'une façon complexe. Il existe un point critique caractérisé par un nombre de Reynolds critique Re_c au-delà duquel les phénomènes de convection deviennent non négligeables devant ceux liés aux forces de frottement. La valeur de Re_c étant beaucoup plus faible pour un écoulement à travers un milieu poreux que dans un tube circulaire (Hagen-Poiseuille), nous en concluons que les milieux poreux ont une texture poreuse difficilement assimilable à un réseau de tubes droits.

3. Modélisation des écoulements

Comme nous l'avons vu précédemment (cf. § A.I.2.a.), la caractérisation des écoulements dans les milieux poreux nécessite très souvent la modélisation soit du milieu, soit de l'écoulement lui-même.

a. Classification des modèles

De très nombreux modèles ont déjà été envisagés ; ils peuvent se répartir, selon l'approche choisie pour résoudre le problème, en cinq classes :

- *Les modèles phénoménologiques :*

Eux seuls ne font aucune hypothèse. A partir d'une analyse dimensionnelle, le gradient de pression qui règne entre les extrémités du milieu est relié à la vitesse d'écoulement par une fonction de plusieurs variables supposées pertinentes pour décrire l'écoulement. La fonction est souvent écrite de façon à faire apparaître des nombres sans dimension intervenant à une puissance à déterminer expérimentalement. L'intérêt de ces modèles est très limité puisqu'ils ne peuvent prévoir, pour un milieu poreux connu, la loi d'écoulement.

- *Les modèles géométriques basés sur l'écoulement dans une conduite :*

Ils ont donné lieu à un très grand nombre de travaux. Ils assimilent tous l'espace poreux à un faisceau de tubes de section circulaire non connectés entre eux, débouchant à chacune des extrémités du milieu poreux. Si l'hypothèse de circularité est loin d'être vérifiée, un facteur de forme peut être défini (Pfannkuch, 1972). Selon la nature des tubes, nous distinguons 3 cas :

- tous les tubes sont identiques : même diamètre et même longueur (Carman, Ergun, etc...)
- les tubes ont la même longueur mais le diamètre diffère de l'un à l'autre (Purcell, 1949)
- les tubes ont la même longueur mais chacun d'eux est composé de petits tubes en série (Scheidegger, p. 121) de diamètre et de longueur variables.

Pour ces trois classes de modèles, les tubes peuvent être tortueux ou non mais toujours parallèles à la direction privilégiée de l'écoulement.

Dans cette classe, peuvent également apparaître les modèles où l'espace poreux est constitué de tubes de diamètre et de longueur variables mais répartis de façon aléatoire (Walsh et Brace, 1984) dans toutes les directions de l'espace.

- *Les modèles statistiques :*

Dans cette catégorie, l'élaboration des lois d'écoulement nécessite le calcul d'une fonction de probabilité adaptée à la modélisation de l'espace poreux choisie. En supposant l'espace poreux composé de tubes de diamètre variable, Childs et Collis-George évaluent la probabilité qu'à un pore, de rayon r' de déboucher sur un pore de rayon r''. La même idée a été reprise par Marshall (1958).

- *Les modèles découlant de la résolution des équations de Navier-Stokes pour des réseaux :*

De nombreuses tentatives ont été menées dans ce domaine, facilitées par le développement de l'informatique. Mais elles ne sont pas toujours très convaincantes. L'écoulement n'est pas forcément unidirectionnel. Le milieu est assimilé à un assemblage

périodique de cellules élémentaires plus ou moins complexes. Nous n'en mentionnerons que quelques unes ici.

Marmur et Rubin (1972) ont assimilé le milieu poreux à un ensemble de cellules identiques disposées périodiquement dans l'espace, parallèlement et perpendiculairement à la direction de l'écoulement, supposée unique. Sans faire d'hypothèse sur la géométrie des pores mais en résolvant l'équation de N-S "localement" (c'est-à-dire pour chaque cellule), ils ont caractérisé l'écoulement dans des milieux "modèles" : empilement de sphères suivant des systèmes cubique ou rhomboédrique.

Payatakes a lui aussi envisagé plusieurs études dans ce domaine. La plus simple (1973) consiste à diviser l'espace poreux en cellules identiques composées chacune par un tube présentant périodiquement un rétrécissement ou un élargissement. La modélisation du milieu s'est compliquée par la suite (Constantinides, 1989) : il est assimilé à un réseau de cellules composées de cavités connectées entre elles par des canaux étroits. L'arrangement des cellules est régulier ou aléatoire. La caractérisation de l'écoulement nécessite dans les deux cas la résolution des équations de N-S.

- *Les modèles reposant sur l'écoulement autour d'objets immergés* :

Dans ce cas, les hypothèses consistent à considérer que le fluide s'écoule au travers d'un essaim de particules. Les résultats ne sont satisfaisants que dans le cas d'un régime laminaire linéaire.

b. Critiques des modèles

Vu la diversité des études réalisées et des résultats obtenus, il serait fastidieux et inintéressant de présenter en détails (hypothèses, méthode de calcul, résultats, domaine de validité) les différents modèles qui ont contribué à la caractérisation des écoulements dans les milieux poreux. Notons simplement que les modèles phénoménologiques n'ont aucun caractère prévisionnel. Les modèles fondés sur l'écoulement dans un tube ne sont valables, la plupart du temps, que pour un régime laminaire linéaire. Ils ont été utilisés à de nombreuses reprises pour tenter d'exprimer la perméabilité k (définie par l'équation A.I.5.) en fonction des caractéristiques géométriques du milieu poreux (Dullien (p. 198) et Comiti (p. 23)). D'autre part, les modèles statistiques et découlant de la résolution des équations de Navier-Stokes nécessitent un long travail de mise en place et une partie importante de calculs. Les modèles basés sur l'écoulement autour d'objets immergés ne sont applicables que si le régime est laminaire linéaire.

Pour ce travail, nous ne présenterons que quelques modèles sélectionnés selon deux critères :

- leur simplicité : dans tous les modèles décrits ci-après, l'écoulement est supposé unidirectionnel (Figure A.I.2.)

- leur domaine de validité : il doit être le plus large possible.

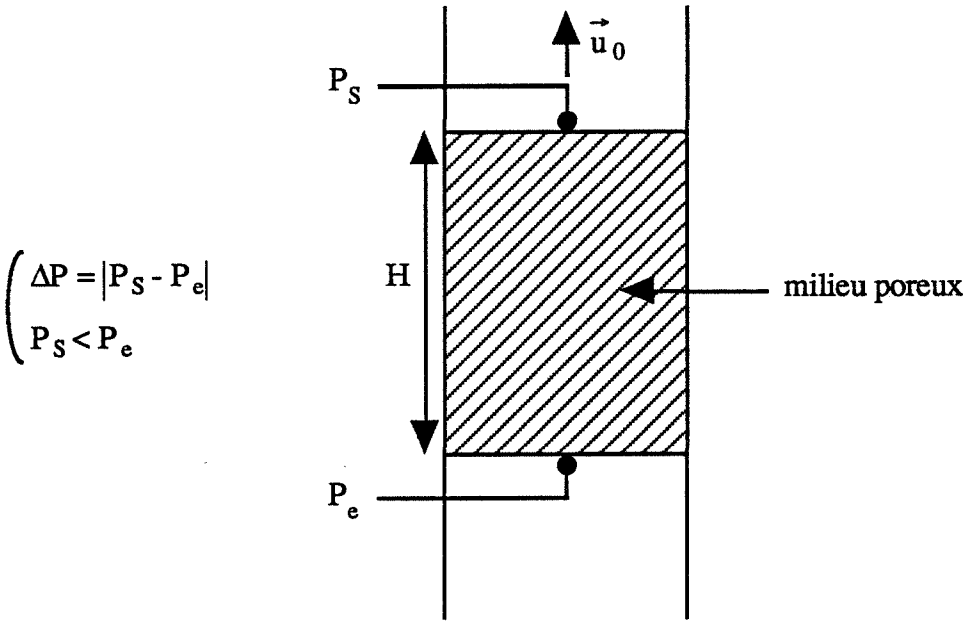


Figure A.I.2. : Principe d'écoulement d'un fluide à travers un milieu poreux.

II. Principaux modèles d'écoulement dans les milieux poreux

1. Modèle d'Ergun (1949)

a. Principe

Ergun considère l'écoulement d'un fluide à travers un tube droit de diamètre d et de longueur H. Reprenant les idées de Blake et de Stanton, il suppose que la chute élémentaire de pression dP qui apparait le long du tube résulte d'une perte d'énergie due à l'énergie dissipée par les forces de frottement à laquelle s'ajoute une perte d'énergie cinétique. Cette dernière, est, selon Brillouin, égale à $1/2\ \rho\ u^2/d$, u étant la vitesse du fluide dans le tube.

Ainsi, la variation de pression est telle que :

$$\frac{dP}{dL} = 32\frac{\eta}{d^2}u + \frac{1}{2}\frac{\rho}{d}u^2 \qquad \text{(A.II.1.)}$$

avec : η : viscosité dynamique du fluide
ρ : masse volumique du fluide
u : vitesse du fluide à l'intérieur du tube
d : diamètre du tube
dL : longueur élémentaire du tube
H : longueur du tube.

b. Hypothèses

Ergun considère que l'espace poreux d'un lit de particules (milieu poreux non consolidé) d'épaisseur H est équivalent à n pores droits cylindriques de même diamètre d et de longueur H, non connectés entre eux répartis à l'intérieur d'un cylindre de longueur H et de diamètre D (Figure A.II.1.a.) de telle sorte que le volume de vide et la surface de solide contenus dans le lit de particules soient identiques respectivement au volume total et à la surface totale des pores.

c. Résultats

Dans ces conditions, la vitesse u_0 du fluide, après traversée du milieu poreux, est telle que $u = u_0/\phi$ où ϕ est la porosité du milieu, c'est-à-dire le rapport du volume de vide contenu dans le lit de particules et du volume total occupé par le lit.
Ainsi, la différence de pression aux bornes du milieu poreux est de la forme :

$$\frac{\Delta P}{H} = 32 \frac{\eta}{d^2} \frac{u_0}{\phi} + \frac{1}{2} \frac{\rho}{d} \frac{u_0^2}{\phi^2} \qquad \text{(A.II.2.)}$$

Si $S_v^{'}$ est le rapport de la surface de solide et du volume de solide, il est aisé d'établir les relations suivantes :

$$n d^2 = D^2 \phi \quad \text{et} \quad d = \frac{4\phi}{(1 - \phi) S_v^{'}}$$

L'équation (A.II.2.) devient alors :

$$\frac{\Delta P}{H} = 2 \frac{(1 - \phi)^2}{\phi^3} S_v^{'2} \eta u_0 + \frac{1}{8} \frac{(1 - \phi)}{\phi^3} \rho S_v^{'} u_0^2 \qquad \text{(A.II.3.)}$$

Cette expression n'est pas satisfaisante puisqu'elle ne tient pas compte de deux faits :
- dans la réalité, les pores ne sont pas droits mais sinueux
- la perte d'énergie cinétique doit dépendre théoriquement du nombre de particules par unité de longueur (Ergun, 1949).

Aussi Ergun préfère modifier l'équation (A.II.3.) en faisant intervenir deux facteurs correctifs α et β. D'où :

$$\frac{\Delta P}{H} = 2\alpha \frac{(1 - \phi)^2}{\phi^3} S_v^{'2} \eta u_0 + \frac{1}{8} \beta \frac{(1 - \phi)}{\phi^3} \rho S_v^{'} u_0^2 \qquad \text{(A.II.4.)}$$

α et β sont supposés constants et déterminés expérimentalement (Ergun, 1952) : $\alpha = 2{,}083$ et $\beta = 2{,}333$.

Les valeurs moyennes de α et de β ont été établies à partir de 640 mesures réalisées sur des lits de particules de taille variable et de forme variée (sphères, sables, etc...) traversés par différents gaz : gaz carbonique, azote, méthane, hydrogène.

Remarque : Très souvent, la relation d'Ergun est présentée sous une autre forme obtenue en exprimant la surface spécifique S'_v en fonction du diamètre D_p de la sphère qui aurait même surface spécifique. Ainsi, $S'_v = \frac{6}{D_p}$ et l'équation A.II.4. devient :

$$\frac{\Delta P}{H} = k_1 \frac{(1-\phi)^2}{\phi^3} \eta \frac{1}{D_p^2} u_0 + k_2 \frac{(1-\phi)}{\phi^3} \rho \frac{1}{D_p} u_0^2 \qquad \text{(A.II.5.)}$$

avec $k_1 = 150$ et $k_2 = 1{,}75$.

d. Domaine de validité

Le modèle a été établi pour des lits de particules de nature variée et pour des gaz uniquement. Cependant, Macdonald (1979) émet quelques restrictions quant à la validité du modèle d'Ergun, utilisé sous la forme faisant intervenir le diamètre D_p :

- le modèle serait assez bien adapté pour décrire l'écoulement à l'intérieur d'un milieu poreux non consolidé (lit de particules) mais pas adapté au cas d'un milieu consolidé (où il est difficile de parler d'un diamètre de particules)

- dans le cas d'un lit de particules, deux problèmes ont été soulevés. Le premier concerne les constantes k_1 et k_2 qui semblent dépendre de la porosité. Le second a trait à la détermination de D_p rendue très imprécise lorsque la distribution de taille des particules est large et/ou que les grains ont une forme très éloignée de la sphère.

e. Equation d'Ergun modifiée

Macdonald (1979) propose alors une équation identique à celle d'Ergun mais où les constantes α et β prennent des valeurs différentes : $\alpha = 2{,}50$ (soit $k_1 = 180$) ; $\beta = 2{,}40$ (soit $k_2 = 1{,}8$) pour les particules lisses et $\beta = 5{,}33$ (soit $k_2 = 4{,}0$) pour les particules rugueuses. Ces constantes sont, là encore, une moyenne des valeurs obtenues pour différentes mesures.

Dans ces conditions, le modèle d'Ergun est peut être amélioré mais le domaine de validité reste le même.

f. Conclusion

Même si le modèle d'Ergun est loin d'être adapté, il est l'un des premiers à décrire le régime laminaire linéaire et non linéaire.

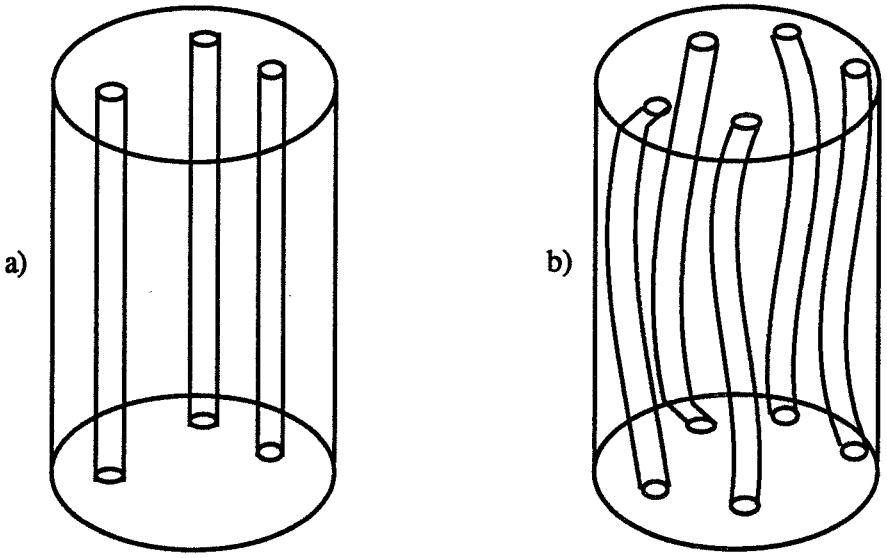


Figure A.II.1. : Modélisation de l'espace poreux selon :
a) Ergun
b) Comiti.

2. Modèle d'Ahmed et Sunada (1969)

a. Principe

Ce modèle ne nécessite aucune hypothèse géométrique. Il suppose seulement que :
- le milieu est homogène, isotrope macroscopiquement ;
- les propriétés physiques du fluide sont homogènes et isotropes.

Il consiste à résoudre l'équation de N-S écrite en un point M du fluide. Les vitesse et pression instantanées en ce point sont supposées osciller autour d'une valeur moyenne. Elles s'expriment donc comme la somme de deux termes : l'un moyen et l'autre de fluctuation.

b. Résolution

Les détails d'un tel calcul ne seront pas mentionnés ici. Notons simplement que, si l'écoulement est stationnaire et unidirectionnel, alors le gradient de pression est égal à la somme de deux intégrales pondérées chacune par un coefficient. Ce dernier dépend de la nature du fluide utilisé (η et ρ), de la vitesse du fluide après traversée du milieu (u_0) et d'une grandeur géométrique d, caractéristique du milieu poreux, consolidé ou non. Ces intégrales quantifient les effets d'une part des forces de viscosité et d'autre part des forces d'inertie. Ces dernières apparaissent sous la forme d'une somme de deux termes caractérisant les phénomènes de convection (produit d'une composante de la vitesse moyenne avec l'une de ses dérivées) pour l'un et de turbulence (produit d'une composante de la vitesse de fluctuation avec l'une de ses dérivées) pour l'autre. Un raisonnement mathématique appuyé par des faits observés a montré que le phénomène de turbulence était négligeable.

c. Résultats

Ainsi, la variation de pression aux bornes du milieu s'écrit comme la somme de deux termes ; le premier caractérise les forces visqueuses et le second les effets de convection et non de turbulence :

$$\frac{\Delta P}{H} = \frac{\eta}{c_1 d^2} u_0 + \frac{\rho}{c_2 d} u_0^2 \qquad \text{(A.II.6.)}$$

où c_1 et c_2 sont des constantes indépendantes du milieu ; d est une constante caractéristique du milieu [d] = L.

Aucun moyen autre qu'expérimental n'existe pour évaluer c_1, c_2 et d.

d. Critiques

Pour ce qui est de la loi de caractérisation des écoulements dans des milieux poreux, ce modèle n'apporte pas d'éléments nouveaux par rapport au modèle d'Ergun : ce dernier nous permettait, connaissant certaines caractéristiques géométriques du milieu, de prévoir l'allure de la variation de ΔP en fonction de u_0 ; le modèle d'Ahmed et Sunada ne nous dispense pas des mesures expérimentales caractérisant l'écoulement.

Par contre, il nous renseigne davantage sur les phénomènes physiques mis en jeu lors de l'écoulement dans les milieux poreux. Pour cette raison, il était bon de le mentionner dans ce travail.

3. Modèle de Comiti (1987)

a. Principe

Le milieu poreux est supposé non consolidé, contenu dans une colonne cylindrique de diamètre D, de hauteur H et de volume V. L'espace poreux est assimilé à n pores cylindriques et tortueux de diamètre d et de longueur L (L > H) non connectés entre eux (Figure A.II.1.b.). L'auteur introduit alors deux grandeurs, inutilisées dans les modèles précédents :

- la tortuosité T du milieu poreux telle que :

$$T = \frac{L}{H} \qquad \text{(A.II.7.)}$$

- la surface spécifique dynamique du milieu a_{vd} égale au rapport de la surface du milieu poreux vue par l'écoulement et du volume de solide. Cette surface spécifique dynamique est égale à la surface volumique S'_v, définie précédemment, uniquement si la surface vue par le fluide est égale à la surface totale de l'espace poreux.

La chute de pression à l'intérieur du milieu poreux résulte de la dissipation, sous deux formes, d'une énergie volumique :

- l'une, ΔP_1, proportionnelle à la vitesse et due aux frottements du fluide sur les parois des pores

- l'autre, ΔP_2, proportionnelle au carré de la vitesse et due aux changements de direction du fluide à l'intérieur du milieu

Remarque : Les lois de variation de la chute de pression en fonction de la vitesse du fluide et les hypothèses concernant l'espace poreux, hormis le caractère tortueux des pores, sont analogues à celles proposées par le modèle d'Ergun.

b. Résolution

Dans de telles conditions, il est facile d'établir les relations suivantes :

$$d = \frac{4\phi}{a_{vd}(1-\phi)} \qquad \text{(A.II.8.)}$$

et : $$u = u_0 \frac{T}{\phi} \qquad \text{(A.II.9.)}$$

où ϕ est la porosité du milieu ; u et u_0 sont les vitesses du fluide à l'intérieur du milieu poreux et après traversée du milieu respectivement.

Le calcul du premier terme ΔP_1 s'effectue à l'aide de l'équation de Hagen-Poiseuille mais l'auteur y fait intervenir un facteur correctif γ, appelé coefficient de circularité :

$$\Delta P_1 = 32\gamma\eta L\frac{u}{d^2} \qquad \text{(A.II.10.)}$$

Par substitution, nous obtenons aisément :

$$\frac{\Delta P_1}{H} = 2\gamma\eta T^2 a_{vd}^2 \frac{(1-\phi)^2}{\phi^3} u_0 \qquad \text{(A.II.11.)}$$

Remarque 1 : Comiti (p. 32) indique que $\gamma = 1$ pour des conduites circulaires et peut varier de 0,6 à 1,5 si la géométrie du tube varie.

Pour le calcul de ΔP_2, chaque pore est représenté par une ligne brisée composée de segments d'une longueur ΔL voisine du diamètre des pores : $\Delta L = zd$ avec $z > 1$. L'énergie dissipée par unité de volume lors des changements de direction du fluide est attribuée à une perte d'énergie cinétique uniquement. Ainsi, à chaque changement de direction, le fluide perd une fraction χ de son énergie cinétique volumique. D'où :

$$\Delta P_2 = \frac{L}{zd}\chi\frac{1}{2}\rho u^2 \qquad \text{(A.II.12.)}$$

Avec les relations (A.II.8.) et (A.II.9.), nous obtenons :

$$\frac{\Delta P_2}{H} = \frac{\chi}{8z} T^3 a_{vd} \frac{(1-\phi)}{\phi^3} \rho u_0^2 \qquad \text{(A.II.13.)}$$

En définissant un facteur de frottement f tel que :

$$f = \frac{\chi}{4z} \qquad \text{(A.II.14.)}$$

l'équation s'écrit : $$\frac{\Delta P_2}{H} = \frac{f}{2} T^3 a_{vd} \frac{(1-\phi)}{\phi^3} \rho u_0^2 \qquad \text{(A.II.15.)}$$

où f = 0,1936 si l'écoulement a lieu à l'intérieur d'une conduite circulaire.

Remarque 2 : Comiti montre que f dépend de la rugosité de la surface poreuse. Il retrouve donc le résultat, observé expérimentalement, de Macdonald (1979) qui suggère, dans l'équation d'Ergun modifiée, une valeur de k_2 différente pour des particules lisses ou rugueuses (cf. § A.II.1.e.).

c. Résultats

Ainsi la chute de pression occasionnée par le passage d'un fluide à travers un milieu poreux non consolidé s'écrit :

$$\frac{\Delta P}{H} = 2\gamma\eta T^2 a_{vd}^2 \frac{(1-\phi)^2}{\phi^3} u_0 + \frac{f}{2} T^3 a_{vd} \frac{(1-\phi)}{\phi^3} \rho u_0^2 \qquad \text{(A.II.16.)}$$

ou encore :

$$\frac{\Delta P}{H u_0} = M + N u_0 \qquad \text{(A.II.17.)}$$

avec : $$M = 2\gamma\eta T^2 a_{vd}^2 \frac{(1-\phi)^2}{\phi^3} \qquad \text{(A.II.18.)}$$

et : $$N = \frac{f}{2} T^3 a_{vd} \frac{(1 - \phi)}{\phi^3} \qquad \text{(A.II.19.)}$$

Remarque : Une autre forme de l'équation (A.II.16.) peut être obtenue en exprimant a_{vd} en fonction de d à l'aide de (A.II.8.) :

$$\frac{\Delta P}{H} = 32\gamma\eta T^2 \frac{1}{d^2\phi} u_0 + 2f T^3 \frac{1}{d\phi^2} \rho u_0^2 \qquad \text{(A.II.20.)}$$

ou encore : $$\frac{\Delta P}{H u_0} = M' + N' u_0 \qquad \text{(A.II.21.)}$$

avec : $$M' = 32\gamma\eta T^2 \frac{1}{d^2\phi} \qquad \text{(A.II.22.)}$$

et : $$N' = 2f T^3 \rho \frac{1}{d\phi^2} \qquad \text{(A.II.23.)}$$

d. Critiques du modèle

Ce modèle conduit à une loi de variation très générale de la chute de pression en fonction de la vitesse mais qui ne présente pas encore un caractère prévisionnel puisque les valeurs de T et de a_{vd} ne sont accessibles jusqu'à présent qu'avec des mesures d'écoulement. La détermination de T et a_{vd} a d'ailleurs été réalisée par Comiti dans des cas particuliers : lits de sphères ou de plaquettes.

Notons aussi que le modèle de Comiti peut s'adapter à des écoulements où les effets de paroi ne sont plus négligeables. Cette possibilité offre un grand intérêt pratique.

4. Conclusion

La modélisation des écoulements dans les milieux poreux présentée précédemment montre que :

- dans le domaine où les forces d'inertie ne sont plus négligeables devant les forces de frottement, aucun phénomène de turbulence n'apparaît ;
- le modèle d'Ergun, même s'il présente un caractère prévisionnel n'est pas toujours satisfaisant ;
- le modèle de Comiti nécessite des études complémentaires afin de déterminer plus précisément les variations des facteurs de circularité, de frottement, de tortuosité et des surfaces spécifiques dynamiques en fonction de la texture poreuse et du fluide utilisés.

Avant de passer à l'étude expérimentale nous allons nous consacrer à une étude bibliographique concernant la tortuosité, rendue nécessaire au vu des différentes expressions de T répertoriées dans la littérature.

III. Tortuosité - Facteur de formation

1. La tortuosité

L'équation de Comiti fait intervenir un facteur de tortuosité T égale au rapport de la longueur L réellement parcourue par le fluide dans le milieu poreux et de la hauteur H de l'échantillon. Cette définition est aujourd'hui, couramment utilisée (Walsh et Brace (1984)).

Notons cependant que certains auteurs (Wyllie et Spangler (1952) ; Wyllie et Gregory (1955)) parlent d'une tortuosité T' telle que $T' = (L/H)^2$. Cette définition a surtout été utilisée pour des travaux datant de 1950 environ. Elle a pu être à l'origine de certaines erreurs rencontrées dans la littérature concernant l'exploitation des résultats expérimentaux.

A l'heure actuelle, il n'existe pas de méthode permettant une mesure directe de la tortuosité. Pourtant, l'évaluation de cette grandeur serait d'un grand intérêt pour la caractérisation des écoulements (équation de Comiti). Sachant que T dépend de la texture poreuse, nous avons envisagé de l'évaluer à partir de propriétés électriques dépendant de la texture poreuse du milieu. Ainsi, nous avons étudié la conductivité électrique d'un électrolyte saturant le milieu poreux.

2. Facteur de formation

a. Définition

La littérature indique que la conductivité d'un électrolyte à travers un milieu poreux est caractérisée par le facteur de formation F. Celui-ci n'a de signification que si le solide constituant le milieu n'est pas conducteur (ou possède une conductivité négligeable devant celle de l'électrolyte). Dans ce cas, F est égal au rapport de la résistivité Γ_m du milieu poreux rempli d'électrolyte et de la résistivité Γ_0 de l'électrolyte seul :

$$F = \frac{\Gamma_m}{\Gamma_0} \qquad \text{(A.III.1.)}$$

La texture poreuse influence la valeur de F par :
- la surface qu'elle offre à la conduction ;
- l'orientation et la topographie des pores conducteurs.

b. Loi d'Archie

Sans faire d'hypothèse sur la géométrie de l'espace poreux, une loi empirique, établie par Archie (1942), relie le facteur de formation à la porosité du milieu :

$$F = \phi^{-m} \qquad \text{(A.III.2.)}$$

où m est le coefficient de cimentation, dépendant de la nature du milieu poreux étudié.

Ainsi formulé, il apparaît clairement que F est indépendant du liquide utilisé. Des études expérimentales (Jackson (1976)) ont montré que m dépendait davantage de la forme des particules que de leur taille moyenne ou de la dispersion de leur taille ; ainsi, m est compris entre 1,2 et 1,9. Ce résultat a été obtenu à partir des mesures réalisées sur des milieux non consolidés, de porosité comprise entre 0,25 et 0,50, constitués soit de sphères, soit de sable, ... Il n'est pas contredit par la littérature. Dullien (p. 220) propose simplement un domaine de variation plus large pour m : entre 1,3 et 2,5.

D'après Dullien (p. 220), cette loi n'a pas été généralisée aux milieux poreux consolidés. Cependant Comiti (p. 65) mentionne un travail de Guyod faisant apparaître que m peut varier de 1,4 à 3 pour des milieux consolidés. Schwartz (1985) constate expérimentalement que dans ce cas, la loi d'Archie n'est plus respectée pour les faibles porosités et que m est voisin de 1,8.

c. Autres expressions

D'autres expressions empiriques ont permis de relier le facteur de formation à la porosité. Notons tout particulièrement celle de Winsauver (1952) mentionnée par Comiti (p. 66) :

$$F = C\phi^{-m} \qquad \text{(A.III.3.)}$$

où C et m sont des constantes. Elle conduit à une contradiction puisque, lorsque ϕ tend vers 1, F tend vers $C \neq 1$.

3. Tortuosité électrique - Tortuosité hydraulique

Schopper (1966) définit un facteur de tortuosité électrique T_e tel que :

$$F = \frac{T_e}{\phi} \qquad \text{(A.III.4.)}$$

et ce sans faire aucune hypothèse sur la géométrie de l'espace poreux. Cette expression traduit le fait que F dépend entre autre de l'orientation et de la topographie des pores conducteurs.

En reprenant les hypothèses du modèle de Comiti, nous arrivons à la relation suivante, établie en annexe I :

$$F = \frac{T^2}{\phi} \qquad \text{(A.III.5.)}$$

avec T = L/H, qui conduit à : $T_e = T^2$ (A.III.6.)

Lorsque la loi d'Archie est vérifiée, nous avons alors :

$$T = \phi^{\left(\frac{1-m}{2}\right)} \qquad \text{(A.III.7.)}$$

Les relations (A.III.5.) et (A.III.6.) ne sont pas admises par tous. En effet, Wyllie et Spangler (1952) utilisent, sans justification préalable :

$$F = \frac{L}{H}\frac{1}{\phi} \qquad \text{(A.III.8.)}$$

Par contre, comme le mentionnent Wyllie et Grégory (1955), Cornell et Katz travaillent avec la relation (A.III.5.). Cette dernière est aussi suggérée par Dullien (p. 227) sous une forme un peu différente.

En réalité, l'écriture de T_e sous la forme proposée par Dullien (p. 227) : $T_e = T^2 \mathfrak{R}$, où $\mathfrak{R}$ est un coefficient de rétrécissement, semble plus adaptée. Notons qu'aucune précision concernant les valeurs possibles de $\mathfrak{R}$ n'est indiquée.

CONCLUSION

La caractérisation des écoulements dans les milieux poreux a suscité de nombreuses études. La plupart des modèles proposés ont été vérifiés dans le cas d'un écoulement unidirectionnel et sur des milieux non consolidés. De plus, il ne sont valables, bien souvent, que si le régime est laminaire linéaire. A l'aide des quelques modèles intéressants établis sur des milieux non consolidés et applicables à un régime laminaire (linéaire ou non), nous allons tenter de caractériser l'écoulement unidirectionnel d'un liquide à travers un milieu poreux consolidé. Comme le suggèrent les différents modèles présentés au paragraphe A.II., une caractérisation géométrique de l'espace poreux est souhaitée pour l'interprétation des courbes de variation de la chute de pression aux bornes du milieu en fonction de la vitesse du liquide.

2EME PARTIE :

REALISATION ET CARACTERISATION DES EMPILEMENTS

B. FABRICATION DES ECHANTILLONS

Le principe de réalisation des empilements consolidés consiste en un frittage partiel d'un empilement non consolidé de billes de verre de même diamètre. Deux procédés de fabrication, indépendants de la taille des billes utilisées, ont été mis au point : l'un au Laboratoire, l'autre au Laboratoire Central des Ponts et Chaussées (L.C.P.C.) avec lequel nous avons collaboré. Nous allons donc présenter les deux techniques proposées puis préciser les raisons qui nous ont conduits à n'en retenir qu'une seule.

I. Procédés de fabrication des empilements consolidés

1. Procédé utilisé au Laboratoire

a. Mise en forme

Après tamisage (à l'aide d'un pinceau), les billes de verre (environ 5 g) sont versées, à l'aide d'une spatule vibrante, à l'intérieur d'un moule en acier composé de trois éléments : la base, le cylindre évidé et le piston (Figure B.I.1.). L'empilement est ensuite légèrement tassé (en faisant heurter brutalement la base du moule sur une paroi). Le piston est ensuite placé sur l'empilement, exerçant sur ce dernier une légère pression (de l'ordre de 1,5 kPa). Le tout est ensuite placé à l'intérieur d'un four à moufle (HERAEUS M 110) à un endroit bien précis, identique d'un échantillon à l'autre, où il est soumis à un traitement thermique.

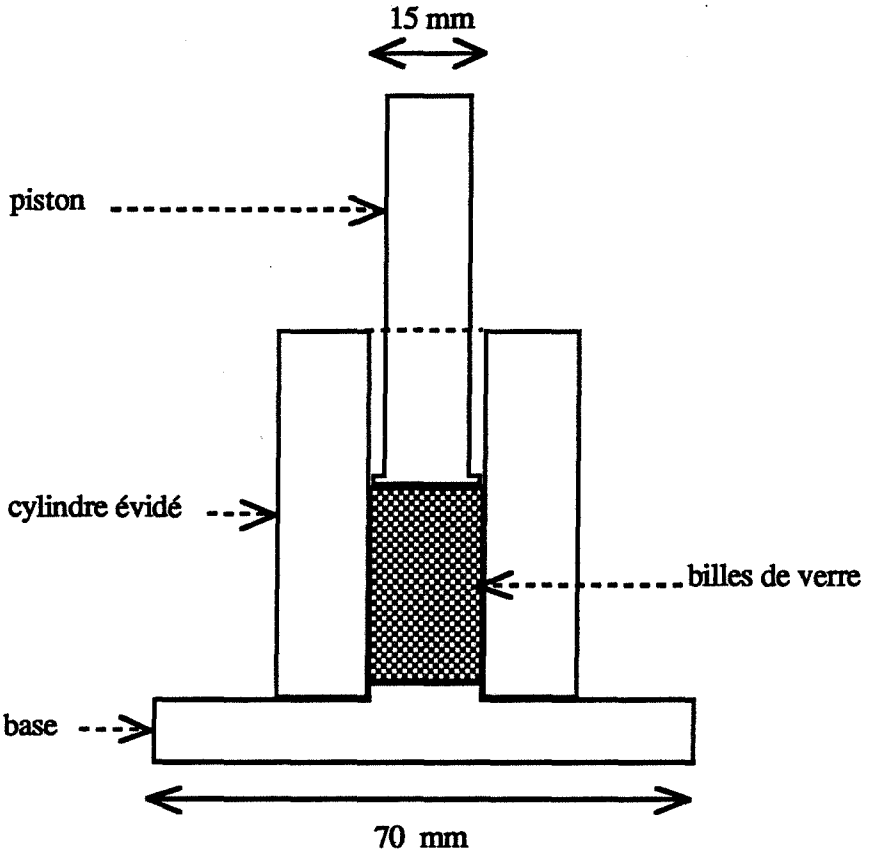


Figure B.I.1. : Coupe longitudinale du moule utilisé pour réaliser les empilements consolidés selon le procédé mis au point au Laboratoire.

b. Traitement thermique

Ce dernier se déroule de la façon suivante (Figure B.I.2.) :

- un passage de la température ambiante à la température dite de frittage $\mathcal{T}_f$, à la vitesse de 9°C/mn. La température de frittage est de 673°C (resp. 700°C) pour les empilements réalisés à partir des billes de diamètre D_{p1} (resp. D_{p2})

- un palier d'une durée variable de 0 à 8 h, à la température de frittage $\mathcal{T}_f$

- une diminution de la température, selon la vitesse de refroidissement maximale du four, jusqu'à 500°C. Le moule est alors retiré du four. Après refroidissement, le démoulage peut être effectué : le piston et la base se retirent facilement du cylindre évidé ; l'empilement, lui, reste attaché aux parois du cylindre : après avoir retiré la base, une force suffisante appliquée, à l'aide d'un étau, sur le piston permet de faire glisser l'empilement à l'extérieur du cylindre.

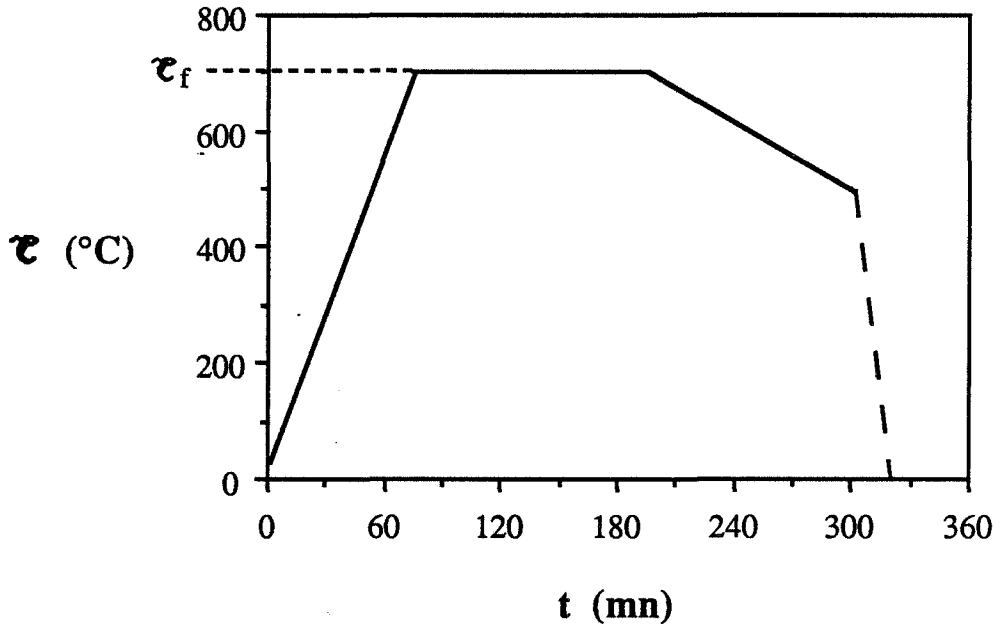


Figure B.I.2. : Traitement thermique utilisé pour consolider, selon le protocole mis au point au Laboratoire, les empilements de billes de verre de diamètre D_{p2}.

c. Caractéristiques géométriques de l'empilement

Ainsi réalisé, l'empilement consolidé est un cylindre d'environ 2 cm de hauteur et de 1,5 cm de diamètre qui présente la particularité d'être déformé : le retrait provoqué par le frittage partiel ne s'effectuant certainement pas de façon homogène, l'échantillon est plus évasé du côté de la base que du côté du piston. D'autre part, pour des raisons probablement liées aux défauts d'empilement initiaux créés par les effets de paroi, il présente également deux régions privilégiées où sa résistance mécanique est plus faible qu'ailleurs ; l'opération de démoulage nécessitant l'application d'une force, elle provoque la séparation de ces zones privilégiées (un cône à chaque extrémité de l'empilement) du reste de l'empilement.

Après polissage grossier (au carbure de silicium 120) permettant d'obtenir des surfaces planes à chaque extrémité de l'empilement, l'échantillon est un cylindre de 1,5 cm de hauteur qui a un diamètre légèrement plus élevé du côté de la base que du côté du piston : l'écart entre ces deux diamètres est d'autant plus fort que le retrait total est important.

2. Procédé utilisé par le L.C.P.C.

a. Mise en forme

Après tamisage (automatique), les billes de verre sont introduites à l'intérieur d'un creuset cylindrique en graphite de 8 cm de diamètre et de 20 cm de hauteur. Contrairement au cas précédent, le mode de mise en place des billes est parfaitement contrôlé : le débit des particules tombant du réservoir d'alimentation est constant, et, par rotation du creuset et translation du réservoir, la hauteur de chute est constante (Gauthier). Dans ces conditions, nous pouvons supposer un empilement homogène des particules.

b. Traitement thermique

Le creuset, muni de son couvercle, est placé dans un four à moufle (de taille suffisante pour y recevoir quatre creusets similaires occupant chacun une position fixée). Le traitement thermique auquel il est soumis, se compose (Figure B.I.3.) :

- d'une augmentation de la température, à la vitesse de 1°C/mn, jusqu'à une température $\mathcal{T}_e$ inférieure de 30°C à la température de frittage $\mathcal{T}_f$;
- d'un palier, d'une durée de 2h, destiné à équilibrer la température dans la totalité de l'échantillon ;
- d'une augmentation de la température, à la vitesse de 0,2°C/mn, jusqu'à la température de frittage. Cette faible vitesse réduit les écarts de température à l'intérieur de l'échantillon ;
- d'un palier à la température de frittage d'une durée comprise entre 0 et 12 heures. La température de frittage est de 645°C (resp. 680°C) pour les empilements réalisés à partir des billes de diamètre D_{p_1}, (resp. D_{p_2}) ;
- d'une diminution de la température, à la vitesse de 0,2°C/mn, jusqu'à $\mathcal{T}_e$;
- d'une diminution de la température jusqu'à l'ambiante selon la vitesse de refroidissement du four (obtenue par coupure de l'alimentation).

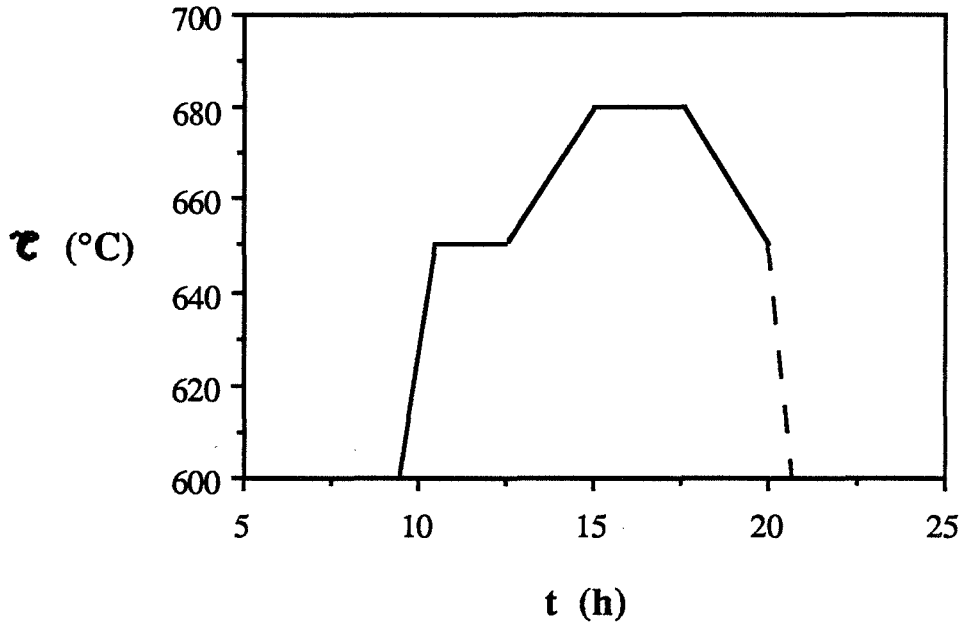


Figure B.I.3. : Traitement thermique utilisé par le L.C.P.C. pour consolider les empilements de billes de verre de diamètre D_{p_2} : le cycle total dure environ 48 heures.

c. Caractéristiques géométriques de l'empilement

Les échantillons ainsi obtenus sont eux aussi légèrement plus larges en bas qu'en haut, permettant ainsi un démoulage n'engendrant aucune détérioration, ni de l'empilement, ni du creuset. Des échantillons parfaitement cylindriques de 1,5 cm de diamètre et de hauteur réglable (nous avons travaillé avec des hauteurs de 1 ou 2 cm) sont alors prélevés, par carottage, à l'intérieur des empilements et parallèlement à l'axe du cylindre. Ayant vérifié l'existence d'un gradient de porosité de bas en haut des empilements dont sont issus les carottages, les échantillons ainsi prélevés présentent un faible gradient de porosité.

II. Echantillons étudiés

1. Choix du procédé de fabrication

La description faite ci-dessus de chacun des procédés de réalisation des échantillons fait apparaitre clairement que la technique utilisée par le Laboratoire Central des Ponts et Chaussées conduit à des résultats meilleurs que ceux obtenus selon notre protocole :

- une géométrie de l'échantillon parfaitement définie
- une homogénéité plus grande dans la répartition des particules composant l'empilement initial
- un traitement thermique favorisant un retrait homogène.

Toutes ces raisons nous ont donc conduits à utiliser les échantillons fournis par le L.C.P.C. Notons cependant qu'une étude réalisée avec des échantillons fabriqués selon notre protocole opératoire (cf. § B.I.1.) a abouti à des résultats tout à fait similaires à ceux présentés par la suite (cf. § D., E. et F.) (Jacquet et Thomas).

2. Type d'échantillons analysés

Les résultats présentés par la suite (cf. § D., E. et F.) ont été obtenus à partir d'empilements consolidés, réalisés par le L.C.P.C. selon le protocole opératoire décrit précédemment (cf. § B.I.2.), constitués de billes de verre de même diamètre, dont les caractéristiques seront données plus loin (cf. § D.I.).

Deux séries d'échantillons notées I et II ont été étudiées : la série I regroupe les échantillons réalisés à partir des billes de diamètre D_{p1} ($50 < D_{p1} < 62$ µm), la série II ceux réalisés à partir des billes de diamètre D_{p2} ($290 < D_{p2} < 320$ µm). Dans chacune des séries, la porosité globale des empilements varie de 0,0 à 0,40 environ.

Tous les échantillons sont des cylindres de diamètre D = 1,5 cm et de hauteur H = 2 cm.

Seuls les échantillons de la première série présentant une faible porosité -inférieure à 0,20- ont une hauteur de 1 cm.

Notons également que chaque échantillon fourni a été caractérisé, au préalable, par le L.C.P.C. : nous disposons ainsi, pour chaque échantillon, d'une mesure de sa porosité ϕ' obtenue par une technique de pesées.

C. METHODES D'ANALYSE DE LA TEXTURE POREUSE

Nous avons vu dans la première partie (cf. § A.I.2.a. et II.2. et II.3.) que la caractérisation des écoulements dans les milieux poreux nécessitait la mesure de certaines grandeurs (porosité, surface spécifique, etc...) représentatives de la texture poreuse. Toutes ces grandeurs sont accessibles à la fois par analyse d'image (mesure directe) et par porosimétrie au mercure (mesure indirecte), deux techniques disponibles au laboratoire.

I. Porosimétrie au mercure

1. Principe

Le principe de cette technique est simple : un liquide non mouillant, comme le mercure, ne peut pénétrer à l'intérieur des pores, supposés cylindriques et de rayon d'entrée r_e, d'un matériau que sous l'effet d'une pression p. Celle-ci est d'autant plus forte que r_e est petit. Ces deux grandeurs sont reliées par la relation de Washburn et Jurin (Charpin J. et Rasneur B.) établie dans l'annexe 2.

$$p = 2\frac{\gamma_0 \cos\theta}{r_e} \qquad \text{(C.I.1.)}$$

où γ_0 : est la tension superficielle du liquide
p : est la pression appliquée
θ : est l'angle de contact du mercure
r_e : est le rayon d'entrée d'un pore, supposée circulaire.

Une analyse par porosimétrie au mercure consiste donc à augmenter graduellement la pression du mercure de 10 Pa environ, à une pression maximale p_{max} autour d'un échantillon de masse m_e. En faisant varier la pression de p_i à p_{i+1}, un volume $(V_{p_{i+1}} - V_{p_i})$ de mercure a pénétré à l'intérieur du milieu poreux ; V_{p_i} est le volume poreux accessible par le mercure sous l'effet de la pression p_i : ces deux grandeurs sont mesurées (Figure C.I.1.). A partir de la courbe V_p (p) et de l'équation (C.I.1.), il est facile de déduire la variation de V_p en fonction de r_e, c'est-à-dire la distribution de taille de pores (Figure C.I.1.b.). Celle-ci va nous permettre d'accéder à différentes grandeurs caractéristiques de l'espace poreux.

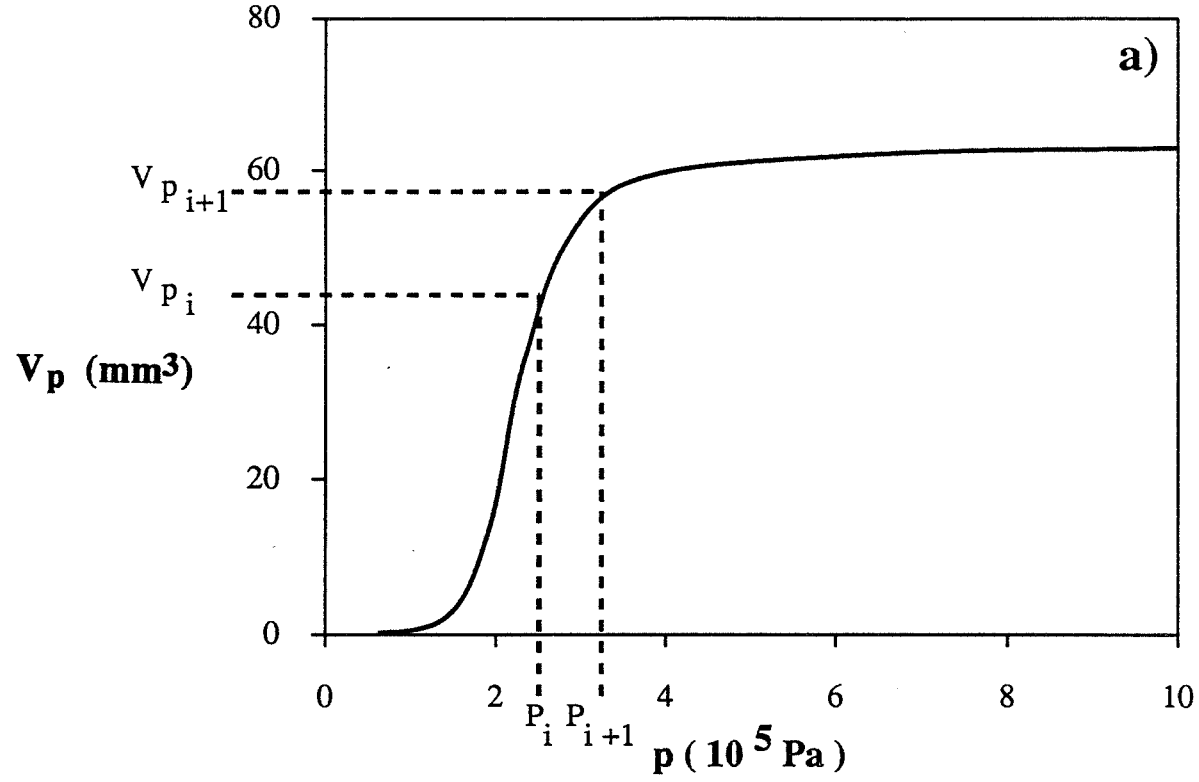
2. Grandeurs mesurées

a. La porosité

Mesurée par porosimétrie au mercure, elle sera notée ϕ_{Hg}. Connaissant la densité De du matériau constituant le milieu poreux, et la masse m_e de l'échantillon analysé, ϕ_{Hg} est calculée à partir de l'expression suivante :

$$\phi_{Hg} = \frac{\left(\frac{V_{p_{max}}}{m_e}\right)}{\left(\frac{V_{p_{max}}}{m_e}\right) + \frac{1}{De}} \qquad \text{(C.I.2.)}$$

dans laquelle $V_{p_{max}}$ est le volume total de mercure qui a pénétré dans le milieu.



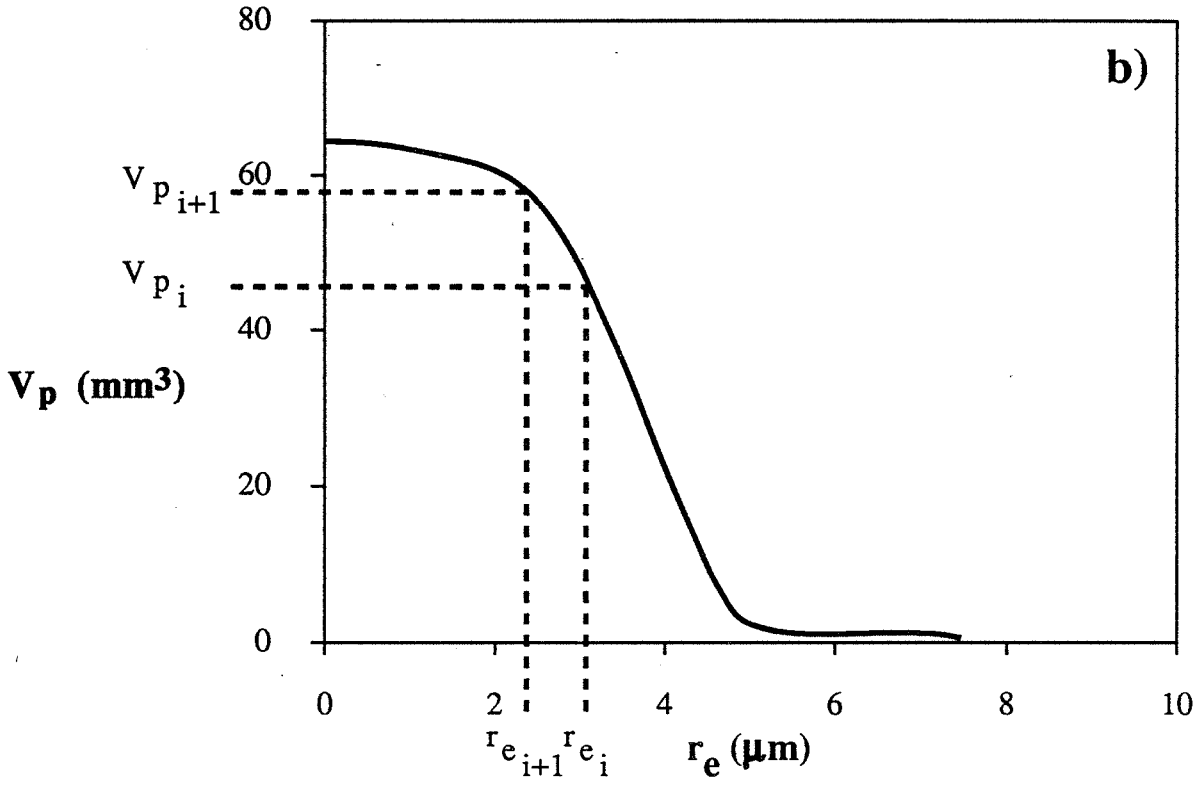


Figure C.I.1. : Exemple de courbes expérimentales obtenues par porosimétrie au mercure :
a) volume poreux en fonction de la pression p appliquée
b) distribution cumulée de taille de pores.

b. La distribution de taille de pores

La variation de V_p en fonction de r_e nous permet de calculer, selon les lois classiques de probabilité, le rayon moyen $\bar{r}_e$ d'entrée des pores, supposés cylindriques et de même longueur ainsi que l'écart type $\sigma(r_e)$ de la distribution :

$$\bar{r}_e = \sum_{i=1}^{n_p} \left[\left(\frac{V_{p_i}}{V_{p_{max}}} \right) \cdot r_{e_i} \right] \qquad \text{(C.I.3.)}$$

$$\sigma(r_e) = \left\{ \sum_{i=1}^{n_p} \left(\bar{r}_e - r_{e_i} \right)^2 \frac{V_{p_i}}{V_{p_{max}}} \right\}^{1/2} \qquad \text{(C.I.4.)}$$

où n_p est le nombre de mesures effectuées.

Remarque : Notons dès à présent que cette technique "privilégie" les "petits" pores : en réalité, de grosses cavités dans l'espace poreux peuvent n'être accessibles que par des petits orifices ; ainsi, un volume poreux important est associé à un faible rayon d'entrée.

c. La surface volumique S'_V

L'expression de S'_V, l'aire développée par l'unité de volume de solide, varie selon la modélisation de l'espace poreux choisie. Deux cas ont été étudiés : l'espace poreux est identique :

- à un faisceau de pores cylindriques : nous obtenons aisément :

$$S'_V = \sum_{i=1}^{n_p} \frac{2}{r_{e_i}} \left(V_{p_i} - V_{p_{i-1}} \right) \frac{De}{m_e} \qquad \text{(C.I.5.)}$$

- à un faisceau de plaques d'épaisseur r_{e_i} :

$$S'_V = \sum_{i=1}^{n_p} \frac{1}{r_{e_i}} \left(V_{p_i} - V_{p_{i-1}} \right) \frac{De}{m_e} \qquad \text{(C.I.6.)}$$

3. Conditions expérimentales

L'appareil utilisé est un "POROSIMETER 2000 SERIES" CARLO ERBA et piloté par un ordinateur IBM. Nous avons fait varier la pression de 10^2 Pa (vide primaire) à 10^7 Pa (100 bars) permettant ainsi d'avoir accès aux pores de rayon d'entre r_e compris entre 40 et 10^{-1} µm.

Cette opération s'effectue dans la réalité en deux étapes décrites en annexe 2.

Les échantillons analysés sont des quarts de cylindre (de 1,5 cm de diamètre) de masse m_e comprise entre 0,8 et 1,2 g permettant ainsi d'avoir des volumes poreux représentatifs (de 80 à 200 mm^3). Ils font tous partie exclusivement de la série I : les échantillons de la série II ont des pores de rayon d'entrée de l'ordre de 50 µm (Frost et Raj) non quantifiables avec notre appareil.

Les logiciels (fournis par CARLO ERBA) utilisés pour le traitement des données, nous donnent accès directement à la distribution de taille de pores $V_p(r_e)$ et aux surfaces spécifiques S_V' pour les différents cas exposés précédemment. Les calculs de la porosité, du rayon moyen $\bar{r}_e$ et de l'écart type $\sigma(r_e)$ ont été réalisés par ailleurs selon les expressions mentionnées précédemment.

II. Analyse d'image

1. Principe

L'échantillon analysé est composé impérativement d'au moins deux phases discernables. A partir de l'observation d'un plan de coupe, convenablement choisi, de cet échantillon, nous allons évaluer certaines grandeurs le caractérisant. Ces dernières, sont, dans la pratique, déduites de l'étude d'une seule phase : la phase privilégiée est appelée **objet**, elle est notée X.

Très souvent, la grandeur g intéressante caractérise l'échantillon considéré dans l'espace de dimension 3 (exemple : surface spécifique, taille de grains, etc...). Or, en pratique, nous ne disposons que d'un plan de section sur lequel nous ne pouvons effectuer des mesures que dans des espaces de dimension 2, 1 ou 0. La stéréologie a pour but de relier une grandeur dans un espace de dimension n à une mesure dans un espace de dimension n - 1.

En résumé, l'analyse d'un échantillon s'effectue en quatre étapes :

- sélectionner un plan de coupe $\mathfrak{C}$ de l'échantillon selon certains critères précisés en annexe 3 ;

- retenir, dans un domaine $\mathfrak{D}$ de ce plan $\mathfrak{C}$, une seule phase ou objet : cette opération est rendue possible grâce, en partie, à la morphologie ;

- réaliser une mesure sur cet objet considéré comme un espace de dimension 2, 1 ou 0 ; ceci est rendu possible grâce, ici aussi, à des transformations morphologiques ;

- évaluer, si c'est possible, à l'aide des relations stéréologiques une grandeur caractérisant l'objet considéré comme un espace de dimension 3, 2 ou 1.

Chacune de ces étapes est reprise en détails dans l'annexe 3.

A partir de maintenant, nous supposons que le lecteur dispose de toutes les connaissances nécessaires à la compréhension de ce qui suit. Si ce n'est pas le cas, qu'il se reporte à l'annexe 3.

2. Les différentes grandeurs utilisées

Les grandeurs utilisées pour l'analyse de nos échantillons sont de deux types : elles sont soit métriques, soit générales (cf. Annexe 3). Les premières sont obtenues par application d'une relation stéréologique ; les secondes sont déduites de différentes distributions de taille de pores.

a. Paramètres stéréologiques

Dans ce paragraphe, nous noterons, sauf avis contraire, de la même façon la grandeur stéréologique et sa valeur moyenne.

Nous avons utilisé uniquement les grandeurs stéréologiques qui caractérisent un espace de dimension 3.

α. La porosité ϕ

La porosité ϕ qui est, avec les notations de l'annexe 3, la fraction volumique $V_V(X)$ de la phase poreuse (notée X). Elle est déduite d'un dénombrement (Tableau 3.1.) ne nécessitant aucune correction de bords. Sa valeur moyenne et l'erreur réalisée sur sa mesure sont calculées selon les expressions (3.3.) et (3.8.) respectivement.

Contrairement à la porosité qui, elle, privilégie l'espace poreux, les deux grandeurs suivantes caractérisent l'interface entre la phase poreuse et la phase granulaire. Pour cette raison, elles peuvent être évaluées en privilégiant l'une ou l'autre des deux phases. Dans la pratique, elles ont été calculées en prenant comme phase objet, la phase granulaire.

β. La surface spécifique

Elle est notée $S_V(X)$, définie comme la surface développée par la phase granulaire par unité de volume. Sa valeur est déduite d'un dénombrement (Tableau 3.1.) nécessitant une correction de bords. Elle est non biaisée, sur le masque de mesure Z' tel que (cf. Annexe 3) :

$$Z' = \bigcap_{i=0}^{2} E^{B_i^c}(Z)$$

et où :

$$B_0^c = \begin{pmatrix} x & x \\ x & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x & x \\ 1 & 1 \end{pmatrix} ; \quad B_1^c = \begin{pmatrix} x & x \\ x & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ x & x \end{pmatrix} ; \quad B_2^c = \begin{pmatrix} x & x \\ x & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x & x \\ 1 & x \end{pmatrix}$$

Par la suite, nous serons amenés à utiliser la surface volumique notée S'_V (de dimension $[L]^{-1}$), définie comme le rapport de la surface développée par la phase granulaire et du volume de la phase granulaire. Avec nos notations, nous obtenons aisément :

$$S'_V(X) = \frac{S_V(X)}{1 - \phi} \qquad \text{(C.II.1)}$$

γ. L'intégrale de courbure moyenne par unité de volume $M_V(X)$ et la courbure moyenne $\overline{H}(X)$

Pour les définir, nous devons faire quelques rappels de géométrie.

En un point quelconque $\mathcal{M}$ d'une surface $\mathcal{S}$ (de dimension 3), paramétrée selon l'abscisse curviligne s, il existe un seul plan $\mathcal{P}$ tangent en $\mathcal{M}$ à la surface $\mathcal{S}$. Par contre, il existe une infinité de plans contenant la normale à la surface au point $\mathcal{M}$ considéré. Parmi ceux-ci, deux plans $\mathcal{P}_1$ et $\mathcal{P}_2$, dits plans principaux, sont tels que les lignes d'intersection $\mathcal{C}_1$ et $\mathcal{C}_2$ de ces plans avec la surface $\mathcal{S}$ présentent la particularité d'avoir des rayons de courbure qui prennent une valeur minimale noté $\mathcal{R}_1$ pour $\mathcal{C}_1$ et maximale, notée $\mathcal{R}_2$ pour $\mathcal{C}_2$ (Figure C.II.1.). Les plans $\mathcal{P}_1$ et $\mathcal{P}_2$ sont perpendiculaires (Connes., p. 19).

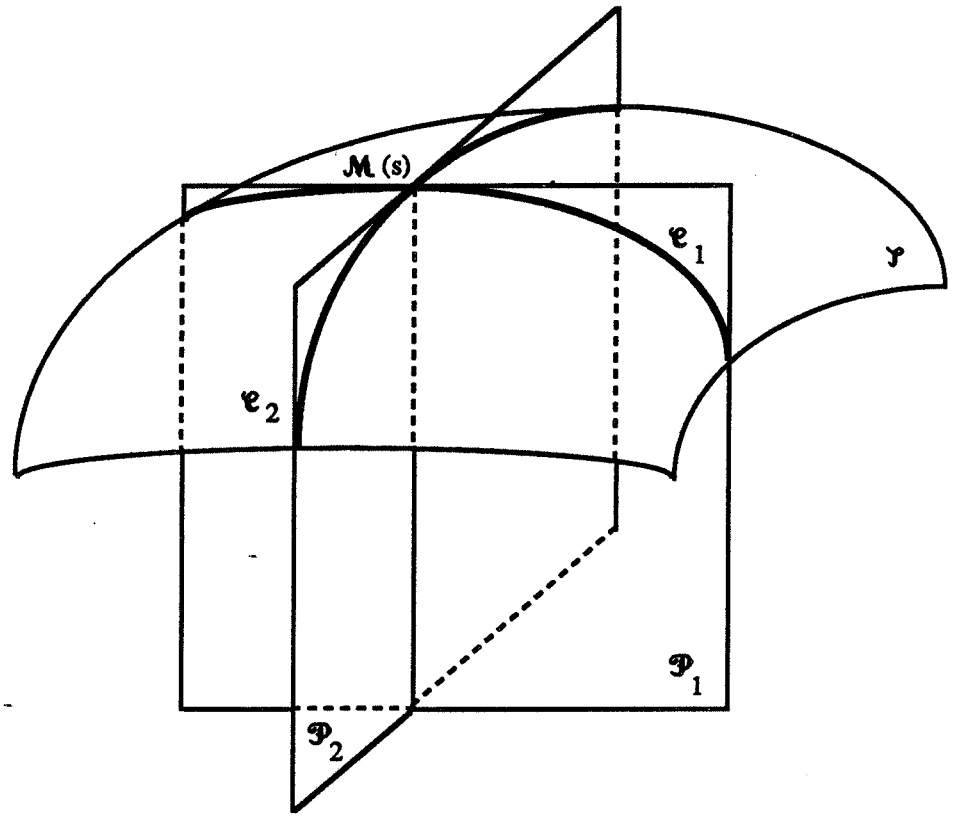


Figure C.II.1. : Représentation des plans principaux d'une surface $\mathcal{S}$ en un point $\mathcal{M}$.

Nous rappelons que le rayon de courbure d'une courbe en un point $\mathcal{M}$ est égal au rayon du cercle osculateur.

Ainsi, $\mathcal{R}_i$ (i = 1, 2) est le rayon du cercle tangent en $\mathcal{M}$ à $\mathcal{C}_i$ (i = 1, 2) et contenu dans le plan $\mathcal{P}_i$. Nous pouvons maintenant définir le rayon moyen de courbure $\mathcal{R}$ (s) et la courbure moyenne H (s) d'une surface $\mathcal{S}$ en un point $\mathcal{M}$ d'abscisse curviligne s par (Bass, p. 473) :

$$\frac{1}{\mathcal{R}(s)} = \frac{1}{2}\left[\frac{1}{\mathcal{R}_1(s)} + \frac{1}{\mathcal{R}_2(s)}\right] \qquad \text{(C.II.2.)}$$

et :

$$H(s) = \frac{1}{\mathcal{R}(s)} \qquad \text{(C.II.3.)}$$

Cas particulier : Si $\mathcal{S}$ est une sphère de rayon R_p, en tout point de la sphère : $H(s) = 1/R_p$.

La phase privilégiée X (objet de dimension 3) est contenue à l'intérieur d'une surface $\mathcal{S}$, paramétrée par l'abscisse curviligne s. Nous allons définir la courbure moyenne de cette surface par :

$$\overline{H}(X) = \frac{\int_{s \in \mathcal{S}} H(s)\, ds}{\int_{s \in \mathcal{S}} ds} \qquad \text{(C.II.4.)}$$

où :

$$M(X) = \int_{s \in \mathcal{S}} H(s)\, ds \qquad \text{(C.II.5.)}$$

n'est autre que l'intégrale de courbure moyenne de la phase X définie dans R^3.

Si $\overline{H}(X)$ est exprimé dans un volume unitaire, nous obtenons la courbure moyenne par unité de volume définie par :

$$\overline{H}(X) = \frac{M_V(X)}{S_V(X)} \qquad \text{(C.II.6.)}$$

Or, $M_V(X)$ et $S_V(X)$ sont des grandeurs stéréologiques (Tableau 3.1.) auxquelles nous avons accès en effectuant des dénombrements non biaisés explicités en annexe 3.

D'après le tableau (3.1.), nous savons que $M_V(X)$ est proportionnelle à $N_A(X)$. Serra (p. 142) a montré par ailleurs que le nombre de connexité $N_2(X)$ dans R^2 de la phase X

était égal au nombre de convexité $N_2^+(X)$ de la phase X diminué du nombre de concavité $N_2^-(X)$ de la phase X, soit : $N_2(X) = N_2^+(X) - N_2^-(X)$. Précisons chacun de ces termes en considérant une section d'un objet 3D à analyser dans laquelle la phase X représentant l'objet est délimitée par une courbe paramétrée par l'abscisse curviligne s (cf. Figure C.II.2.). En chaque point $\mathcal{M}$ de la courbe Γ, il est possible de définir un et un seul rayon de courbure $\mathcal{R}'(s)$ égal au rayon du cercle osculateur qui peut être, selon les cas, dirigé vers l'intérieur ou l'extérieur de la phase X privilégiée. Par convention, $\mathcal{R}'(s)$ est positif (respectivement négatif) lorsqu'il est dirigé vers l'intérieur (respectivement l'extérieur) de la phase X. Dans ces conditions, Serra établit les relations suivantes :

$$N_2^+(X) = \frac{1}{2\pi} \int_{\substack{s \in \Gamma \\ \mathcal{R}'(s) > 0}} \frac{1}{\mathcal{R}'(s)} ds \qquad \text{(C.II.7.)}$$

$$N_2^-(X) = \frac{1}{2\pi} \int_{\substack{s \in \Gamma \\ \mathcal{R}'(s) < 0}} \frac{1}{\mathcal{R}'(s)} ds \qquad \text{(C.II.8.)}$$

Ainsi, le signe de $M_V(X)$ ou de $\overline{H}(X)$ dépend de l'importance du nombre de convexité devant le nombre de concavité dans R^2 de la phase X.

Les grandeurs stéréologiques présentées jusqu'ici sont les seules qui caractérisent une phase en la considérant comme un objet de dimension 3. D'autres grandeurs stéréologiques auraient pu nous permettre de caractériser une phase en tant qu'objet de dimension 2, mais elles n'auraient été d'aucune utilité pour l'interprétation des propriétés d'écoulement dans nos échantillons ; elles n'ont donc pas été retenues.

Présentons maintenant les différents paramètres généraux déduits des distributions de taille accessibles par analyse d'image.

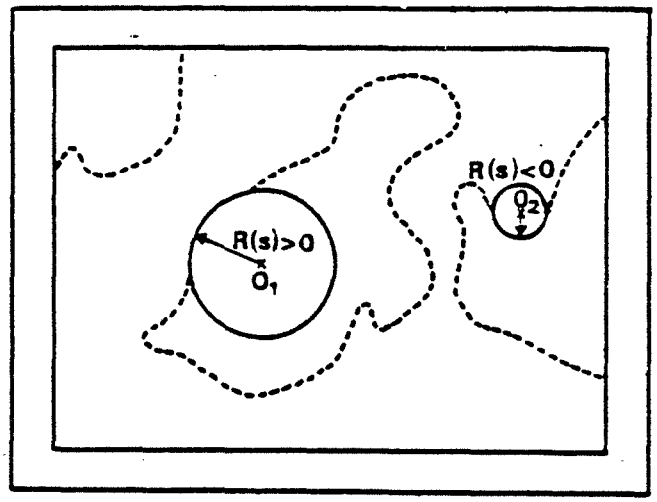


Figure C.II.2. : Courbure dans R^2 (d'après Coster et Chermant, p. 45).

b. Distributions de taille

Nous parlerons d'une distribution granulométrique (et d'une distribution de taille de pores) lorsque la phase privilégiée est la phase granulaire (respectivement poreuse). Dans ce paragraphe, la phase objet est soit la phase poreuse, soit la phase granulaire.

α. Cas général

Dans la pratique, nous disposons d'une image I_b dans laquelle la phase X est privilégiée. Celle-ci peut être continue ou discontinue. Nous définissons une distribution de taille par une transformation T qui, appliquée à l'image, modifie la phase X. Si elle est appliquée λ fois, elle est notée T_λ.

La transformation T_λ, après être appliquée, ne retient qu'une partie de la phase X, d'autant plus petite que λ est grand. L'entier λ peut alors être considéré comme un paramètre de taille et une fonction de distribution de taille $D(\lambda)$ peut être définie.

A partir de la fonction de distribution, nous définissons une taille moyenne :

$$\overline{\lambda} = \int_0^{\lambda_{max}} \lambda \, d\left[D(\lambda)\right] \qquad \text{(C.II.9.)}$$

et un écart type de la distribution :

$$\sigma(\lambda) = \left[\int_0^{\lambda_{max}} (\bar{\lambda} - \lambda)^2 \, d[D(\lambda)] \right]^{1/2} \qquad \text{(C.II.10.)}$$

mais aussi une fonction densité d (λ) égale à la dérivée par rapport à λ de D (λ).

L'ouverture selon un élément structurant bien adapté (Missiaen, p. 194) et à préciser, vérifie les propriétés indiquées ci-dessus.

Les ouvertures adaptées et fréquemment utilisées sont l'ouverture linéaire (définie dans R^1) et l'ouverture hexagonale (définie dans R^2) (Annexe 4). Elles permettent d'établir la distribution des intercepts dans R^1 et la distribution des diamètres du disque inclus dans R^2. Nous parlerons par la suite de distributions obtenues par **ouverture linéaire (distribution des intercepts)** ou par **ouverture bidimensionnelle (distribution des diamètres du disque inclus)**. Dans chaque cas, il peut s'agir d'une **distribution en nombre** ou d'une **distribution en mesure** (Coster et Coll., p. 123).

Nous allons maintenant expliciter chacune de ces distributions dans le cas d'une analyse locale uniquement ; les expressions diffèrent si l'analyse est globale (Coster, p. 119).

β. Distribution par ouverture linéaire

L'ouverture linéaire de taille λ supprime les parties de X qui ont une taille inférieure à $l = \lambda \, dL_1$, où l représente la longueur de l'intercept et dL_1 est la distance qui sépare deux pixels, selon la direction choisie, de la trame, supposée hexagonale. La fonction de distribution par ouverture linéaire exprime la fraction -en nombre (resp. en mesure) s'il s'agit de la distribution en nombre (resp. en mesure)- d'intercepts de longueur supérieure à l.

Ainsi, la fonction de distribution en nombre s'écrit :

$$F(l) = \frac{N_L(X) - N_L\left[O^{\lambda(1)}(X)\right]}{N_L(X)} \qquad \text{(C.II.11.)}$$

où (1) est l'élément structurant (défini en annexe 4) :

$$\begin{pmatrix} x & x \\ x & 1 \end{pmatrix} \quad \begin{pmatrix} x & x \\ 1 & x \end{pmatrix}$$

et la fonction de distribution en mesure s'écrit :

$$G(l) = \frac{L_L(X) - L_L\left[O^{\lambda(1)}(X)\right]}{L_L(X)} \qquad \text{(C.II.12.)}$$

$N_L(X)$: nombre de connexité dans R^1 de X par unité de longueur
$L_L(X)$: longueur de l'objet X par unité de longueur
$O^{\lambda(1)}(X)$: l'ouverture de taille λ de X selon l'élément structurant (1).

Dans la pratique, ces distributions sont calculées à partir d'une fonction P (l) telle que :

$$P(l) = \frac{A\left[E^{\lambda(1)}(X) \cap E^{\lambda(1)}(Z)\right]}{A\left[E^{\lambda(1)}(Z)\right]}$$

A (X) : l'aire occupée par l'objet X
$E^{\lambda(1)}(X)$: l'érodée de taille λ de X selon l'élément structurant (1).

Les relations existant entre P (l) d'une part et F (l) et G (l) d'autre part, sont explicitées dans la thèse de Missiaen (p. 203).

A partir de la distribution en nombre (resp. en mesure), nous définissons un intercept moyen en nombre $\bar{l}_n$ (respectivement en mesure $\bar{l}$) et un écart type moyen $\sigma(l_n)$ (resp. $\sigma(l)$) selon les équations C.II.9. et C.II.10.

γ. Distribution par ouverture bidimensionnelle

L'ouverture hexagonale (définie en annexe 4) de taille λ supprime les parties de la phase X privilégiée dans lesquelles est inclus un hexagone de taille $\delta = \lambda\, dL_1$. La fonction de distribution par ouverture bidimensionnelle exprime la fraction numérique (surfacique) des parties X dans lesquelles peut s'inscrire un hexagone de taille inférieure à δ. Contrairement au cas précédent, la distribution numérique obtenue par ouverture bidimensionnelle n'est définie que si la **phase X est composée d'objets disjoints convexes** (Missiaen, p. 195). Ces fonctions de distribution numérique et surfacique s'écrivent respectivement :

$$F(\delta) = \frac{N_A(X) - N_A\left(O^{\lambda(H)}(X)\right)}{N_A(X)} \qquad \text{(C.II.13.)}$$

$$G(\delta) = \frac{A_A(X) - A_A\left(O^{\lambda(H)}(X)\right)}{A_A(X)} \qquad \text{(C.II.14.)}$$

$N_A(X)$ et $A_A(X)$ sont respectivement le nombre de connexité dans R^2 de la phase X par unité d'aire et l'aire de la phase X par unité d'aire. Ces grandeurs sont accessibles par analyse d'image (Tableau 3.1.).

(H) est l'élément structurant où tous les pixels du voisinage, de même que celui du centre prennent la valeur 1 (Annexe 4).

Ces distributions ne sont pas biaisées si elles sont calculées sur le masque de mesure : $Z' = E^{\lambda_{max}(H)}(Z)$.

A partir de la distribution en nombre (resp. en mesure), nous calculons selon les équations C.II.9. et C.II.10., le diamètre moyen -sous-entendu du disque inclus (l'hexagone étant assimilable au disque)- en nombre $\overline{\delta}_n$ (respectivement en mesure $\overline{\delta}$) et l'écart type $\sigma(\delta_n)$ (resp. $\sigma(\delta)$).

δ. Exploitation des distributions de taille

Notons dès maintenant que les distributions en mesure présentent un caractère plus général que les distributions en nombre. Ces dernières n'ont de sens que si la phase étudiée est composée d'objets distincts (cas de nos empilements non consolidés).

Si, de plus, les objets sont sphériques, il est possible d'établir, à partir de F (l) et F (δ) la distribution de taille F (D_p) des particules considérées non plus comme des objets à une dimension (intercept) ou à deux dimensions (diamètre du disque) mais comme des objets de dimension 3 (diamètre D_p des sphères). Le passage de l'une à l'autre peut s'effectuer selon les relations rapportées par Coster (p. 147).

Pour notre étude, nous n'avons pas effectué ces transformations, nous avons préféré utiliser une autre méthode.

δ.1. Distribution par ouverture linéaire

Elle donne accès, dans le cas général, à des paramètres généraux.

Toutefois, lorsque la phase est composée d'objets disjoints, l'intercept moyen $\overline{l}_n$ est relié à une grandeur moyenne caractéristique de la particule, assimilée à une forme géométrique particulière.

Si la particule est supposée sphérique de diamètre $\overline{D}_p$, nous aurons, d'après Underwood (p. 91) :

$$\overline{l}_n = \frac{2}{3}\overline{D}_p \qquad \text{(C.II.15.)}$$

D'autre part, quelle que soit la phase X étudiée, la fonction P (l) définie précédemment, permet d'accéder à la fonction étoile (Coster, p. 143) notée St_3 (X) (respectivement St_2 (X)) si elle est définie dans R^3 (resp. dans R^2). Nous n'expliciterons que St_3 (X) car nous n'utiliserons pas, en pratique, St_2 (X).

St_3 (X) représente le volume moyen directement accessible par un point quelconque de la phase X (Figure C.II.3.). Sa valeur est :

$$St_3(X) = \frac{4}{P(0)} \int_0^{l_{max}} l^2 P(l)\, dl$$

avec $l_{max} = \lambda_{max}\, dL_1$.



Figure C.II.3. : Représentation de la fonction étoile dans R^2 pour un point x de la phase poreuse : la surface hachurée correspond à l'ensemble des points d'une phase poreuse (en noir) directement accessible à partir de x (d'après Coster et Chermant, p. 143).

δ.2. Distribution par ouverture bidimensionnelle

Si la phase X étudiée est composée d'objets ni disjoints, ni sphériques, cette distribution doit être considérée comme un paramètre général.

Dans la pratique, nous analyserons essentiellement les distributions de taille de pores pondérées en mesure, obtenues par ouvertures linéaire et bidimensionnelle de la phase poreuse. Quant aux distributions de taille de grains, elles ne peuvent être évaluées dans de bonnes conditions et avec les méthodes présentées ci-dessous, que lorsque les empilements ne sont pas ou peu frittés. Nous nous sommes contentés d'établir les distributions de taille des grains uniquement pour l'étude des empilements non consolidés mais selon une autre méthode, dite de Saltykov (Underwood, p. 123) particulièrement bien adaptée à la forme des particules utilisées. En effet, elle nous donne accès à une distribution numérique des diamètres D_p des particules (et non des disques) supposées parfaitement sphériques. La méthode est explicitée en annexe 5.

3. Protocole opératoire

a. Préparation des sections analysées

Pour être analysés, les échantillons doivent d'une part être sectionnés, et d'autre part, présenter deux phases discernables : la phase granulaire ne pose pas de problèmes particuliers par contre, la phase poreuse doit être concrétisée. Cette opération, appelée imprégnation de l'échantillon, consiste à remplir l'espace poreux d'une résine, substance solide.

Notons dès maintenant que les empilements frittés sont sectionnés puis imprégnés alors que les empilements non consolidés sont imprégnés, afin de les consolider, puis sectionnés.

α. Choix du plan de section

- Les empilements frittés :

Le mode de fabrication des échantillons cylindriques consolidés est tel que les éventuelles inhomogénéités susceptibles d'exister dans la structure des empilements sont négligeables (cf. § B.II.1.).

Nous supposerons donc que ces échantillons sont homogènes. Dans ces conditions, une seule section de l'échantillon est réalisée (cf. annexe 3.III.). Pour des raisons pratiques, la direction parallèle à l'axe du cylindre est privilégiée : la coupe de l'échantillon conduit (grossièrement) à deux demi-cylindres.

Remarque : Afin de permettre leur imprégnation, les demi-cylindres de 2 cm de hauteur ont été coupés de façon à obtenir deux demi-cylindres de 1 cm de hauteur. Deux imprégnations ont alors été nécessaires pour l'analyse d'un seul échantillon.

- Les empilements non frittés :

Nous supposons qu'ils sont isotropes aléatoires et homogènes (cf. Missiaen, p. 120). Dans ces conditions aucune difficulté n'apparaît pour le choix de la section. Pour des raisons pratiques, nous avons coupé l'échantillon perpendiculairement à l'axe du cylindre.

β. Imprégnation

La résine dont il est question dans ce paragraphe est en fait un mélange, selon les proportions indiquées par le fournisseur (STRUERS), d'une résine et d'un durcisseur Epofix auquel ont été ajoutées quelques gouttes d'un colorant liquide pour peintures (BHV). Ce colorant est nécessaire pour rendre opaque la résine qui, naturellement, est transparente.

Sans cette précaution, les échantillons étant observés sous microscope optique, les billes de verre situées sur la surface polie, mais aussi en profondeur, diffusent la lumière du faisceau incident dans toutes les directions. La surface présente alors une luminosité uniforme ne permettant aucun contraste entre les phases.

Par ailleurs, la couleur du colorant n'a aucune influence sur la qualité du contraste final, obtenu après polissage, entre la phase granulaire et la phase poreuse. Nous avons en effet, essayé les couleurs jaune et noire ; nous avons choisi d'utiliser le colorant jaune qui possède des caractéristiques physiques meilleures que celles du noir (fluidité, homogénéité).

La technique d'imprégnation diffère selon la nature des échantillons.

- Les empilements frittés :

Chaque échantillon est placé dans un moule cylindrique (diamètre : 2 cm, hauteur : 2 cm), puis partiellement immergé dans une résine Epoxy fluide préalablement chauffé au bain marie (50°C). Le tout est mis sous vide, pendant 5 minutes environ, à l'intérieur d'une enceinte (diamètre : 6 cm, hauteur : 4 cm). Le vide est obtenu à l'aide d'une trompe à eau. La pression mesurée est de l'ordre de 5 kPa. Le tout est ensuite laissé à l'air ambiant (une durée de dégazage trop importante conduit apparemment à une détérioration des propriétés de la résine). Au bout de 12 heures environ, la polymérisation de la résine, qui s'effectue sans retrait, est terminée. Le polissage peut être effectué.

- Les empilements non frittés :

Ils sont réalisés en versant les billes de verre à l'intérieur d'un creuset en résine Epoxy (de 1 cm de diamètre et 1 cm de hauteur) de façon à former un lit de 0,5 cm de hauteur. La résine et le creuset sont maintenus au bain marie à 50°C (cf. Missiaen, p. 120). La résine est ensuite déposée goutte à goutte, à l'aide d'une micro-seringue, à la surface de l'empilement. Comme elle est très fluide, la totalité de l'espace poreux est remplie. Le creuset est ensuite retiré du bain marie et laissé à l'air ambiant.

Une opération de dégazage sous vide, analogue à celle utilisée pour imprégner les empilements frittés, n'a pas été envisagée par crainte d'une modification de la position des grains les uns par rapport aux autres.

γ. Polissage

La polisseuse utilisée est le modèle Mecapol-2B de PRESI. Le protocole de polissage est identique à tous les échantillons. Les différentes étapes qui le constituent sont rassemblées dans le tableau (C.II.1.). Les particules abrasives sont toujours des particules de diamant. Les références concernant les tissus et les lubrifiants organiques utilisés sont celles de chez PRESI. Les durées indiquées pour chaque étape sont en réalité des valeurs minimales. Elles peuvent varier de façon notable d'un échantillon à l'autre. La vitesse de rotation du disque est faible (de l'ordre de 150 tours/mn) afin d'éviter des arrachements.

Caractéristique du support des particules abrasives	Référence des tissus	Taille des particules abrasives (µm)	Lubrifiant	Durée (min)
Plateau diamanté		20	eau	1 - 5
Tissu "tissé"	NWF	8 - 15	LD 31	8
Tissu "tissé"	NWF	4 - 8	LD 31	8
Tissu "non tissé"	NWUF	2 - 4	LD 31	6
Tissu "velouté"	TFR	< 1	eau	1

Tableau C.II.1. : Récapitulatif des différentes étapes du polissage.

δ. Optimisation du contraste

Le protocole de polissage décrit précédemment conduit à des résultats globalement satisfaisants. Cependant, la caractérisation par analyse d'image n'est pas envisageable à ce stade de la préparation. En effet, aucun contraste entre les deux phases (phases poreuse et granulaire) n'apparaît.

Pour résoudre ce problème, nous avions trois possibilités : la première consistait à modifier le dispositif d'éclairage du microscope pour qu'il permette un meilleur contraste (lumière rasante, etc...), la seconde trouver une résine qui ait les mêmes propriétés que celle utilisée (fluidité, faible retrait) et un indice de réfraction très différent de celui du verre. Tous les essais réalisés dans chacune de ces deux directions n'ont pas abouti.

La troisième possibilité consiste à faire subir à la surface polie un traitement (thermique ou chimique) sous l'effet duquel un seul des deux composants (la résine ou le verre) réagira. Or, la silice du verre est attaquée par l'acide fluorhydrique, et nous avons vérifié que cet acide était sans effet sur la résine. Le contraste entre les phases granulaire et poreuse a donc été obtenu par voie chimique en faisant réagir, dans des conditions précisées en annexe 6, l'acide fluorhydrique et la silice, rendant le verre dépoli.

Remarque : Coronel (p. 13) s'est lui aussi heurté au problème de contraste inexistant entre une résine et des billes de verre. Pour le résoudre, il a préféré n'effectuer qu'un polissage partiel des échantillons. Nous avons également utilisé cette solution mais les résultats obtenus ne sont pas reproductibles ; ils semblent dépendre des conditions de polissage et plus particulièrement de la propreté des tissus et de la quantité de lubrifiant utilisée.

b. Conditions expérimentales

Lorsque les échantillons ont été polis et traités à l'acide fluorhydrique, l'analyse proprement dite peut être réalisée.

α. Description du dispositif expérimental

Le schéma général d'un analyseur d'image est présenté sur la figure 3.IV.1. Dans le cas qui nous concerne, l'échantillon est placé sous un microscope optique (Axioscop de ZEISS) en lumière réfléchie. La prise de vue est assurée par une caméra vidéo noir et blanc à tube Chalnicon HAMAMATSU C 2400 - 01. L'analyseur d'image proprement dit est le Morphopericolor de S.E.P. IMAGES commandé par un micro-ordinateur OLIVETTI M 380. Ce dernier possède parmi ses périphériques, une souris SUMMA MOUSE RS 232 C.

Nous ne détaillerons pas les différentes opérations qui permettent de passer de l'image vidéo à l'image numérique. Précisons simplement que les images numériques et binaires sont des tableaux de 512 x 512 pixels : ces derniers sont répartis selon une trame hexagonale. A chaque pixel d'une image numérique est associé un niveau de gris, codé sur 6 bits, variant de 0 à 63. A chaque pixel d'une image binaire est associée la valeur 1 ou 0.

β. Choix du grossissement

Des études antérieures menées au laboratoire (Missiaen, p. 131) ont montré que le grossissement adapté pour l'étude d'un milieu devait conduire à une valeur du paramètre de résolution k_R supérieure à 50 ; k_R étant défini comme le rapport d'une taille moyenne caractérisant le milieu et de la longueur associée à un pixel.

En prenant pour taille moyenne caractéristique du milieu le diamètre des particules, le grossissement adapté pour l'étude de nos échantillons est de 400 (obtenu avec l'objectif 20 x 10,50) pour ceux réalisés à partir des billes de diamètre D_{p_1} ($50 < D_{p_1} < 62$ µm) et de 100 (objectif 5 x 10,50) pour les autres : la valeur du paramètre de résolution est, dans le premier cas, proche de 50 et, dans le second cas, voisine de 70.

γ. *Définition du masque de mesures*

Pour chaque échantillon, le masque de mesures est constitué de 12 champs de mesures. Chacun de ces champs est prélevé de façon aléatoire sur la ou le(s) sections(s) polie(s) de l'échantillon de telle sorte qu'il soit totalement inclus dans le plan de section d'une part, et qu'aucun recouvrement entre les champs ne se produise d'autre part.

c. *Acquisition des images*

L'acquisition des images diffère selon la nature du milieu et plus précisément selon la taille des particules le constituant et le fait qu'il soit consolidé ou non.

α. *Cas des empilements réalisés à partir des billes de 290-320 µm*

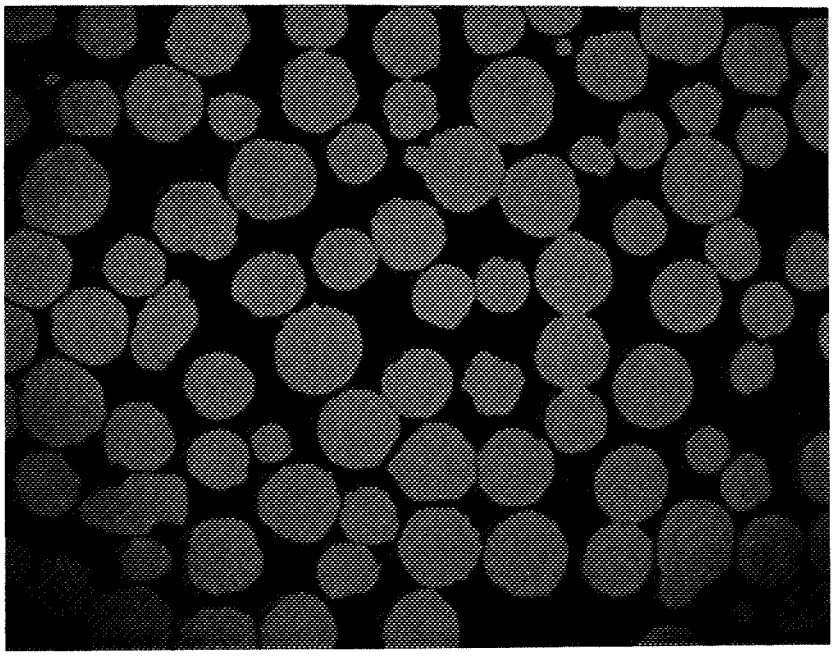
Les milieux réalisés à partir des billes de diamètre compris entre 290 et 320 µm offrent un contraste plus marqué que les autres échantillons (cf. figure C.II.5.) : l'acquisition est ainsi facilitée : aucun traitement numérique n'a été nécessaire. Le traitement binaire utilisé diffère si l'empilement est consolidé ou non ; dans les deux cas, il nécessite peu de corrections ponctuelles réalisées à l'aide de la souris. Des exemples des images binaires ainsi obtenues sont présentées sur la figure C.II.4.

β. *Cas des empilements réalisés à partir des billes de 50-62 µm*

Dans ce cas, le contraste offert est nettement moins marqué que précédemment (cf. figure C.II.5.) et tous les contours de la phase granulaire n'apparaissent pas clairement : l'acquisition est donc plus difficile. Elle nécessite un traitement numérique (addition à l'image numérique initiale de son gradient) et un traitement binaire où de nombreuses interventions ponctuelles, effectuées manuellement (tracé de certains contours, etc...) sont indispensables. Celles-ci tendent à augmenter notablement la durée de l'acquisition sans pour autant conduire à une grande qualité des images binaires. Nous prendrons pour exemple le fait que les particules dont une partie du contour a été dessinée à l'aide de la souris, ne sont pas parfaitement circulaires (cf. figure C.II.4.).

Après la présentation des différents paramètres retenus et de la mise en oeuvre de la méthode, nous allons maintenant exposer les principaux résultats expérimentaux obtenus.

1)



2)

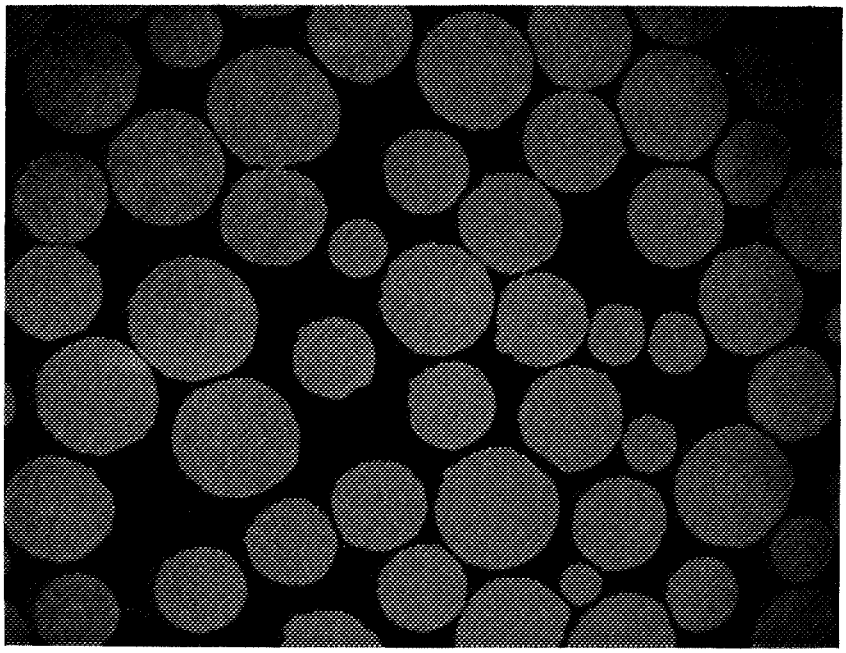
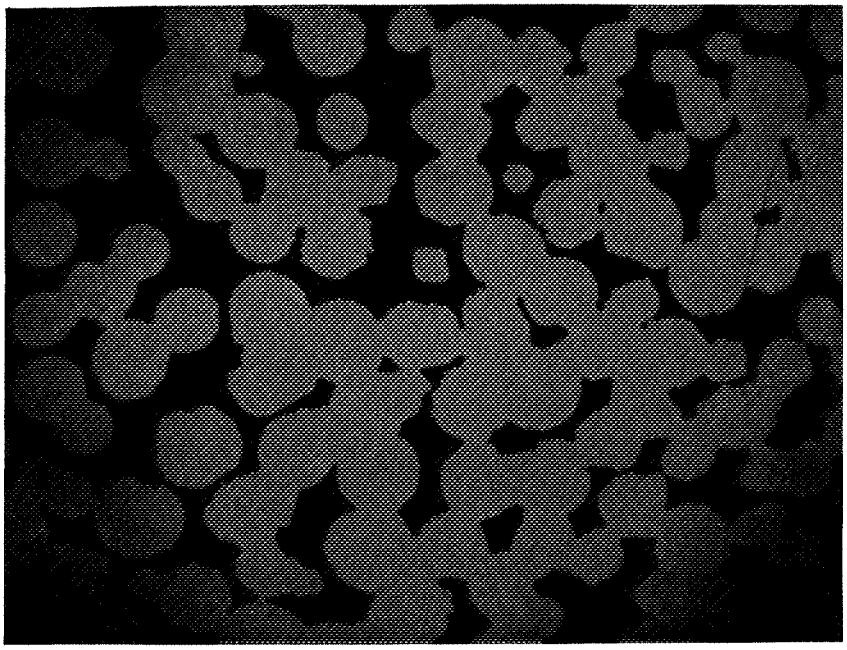


Figure C.II.4.a. : Images binaires issues d'une section réalisée sur des empilements non consolidés de billes
1) de 55 µm de diamètre
2) de 300 µm de diamètre.
La longueur de l'image est égale à :
1) 0,5 mm
2) 2,2 mm.

1)



2)

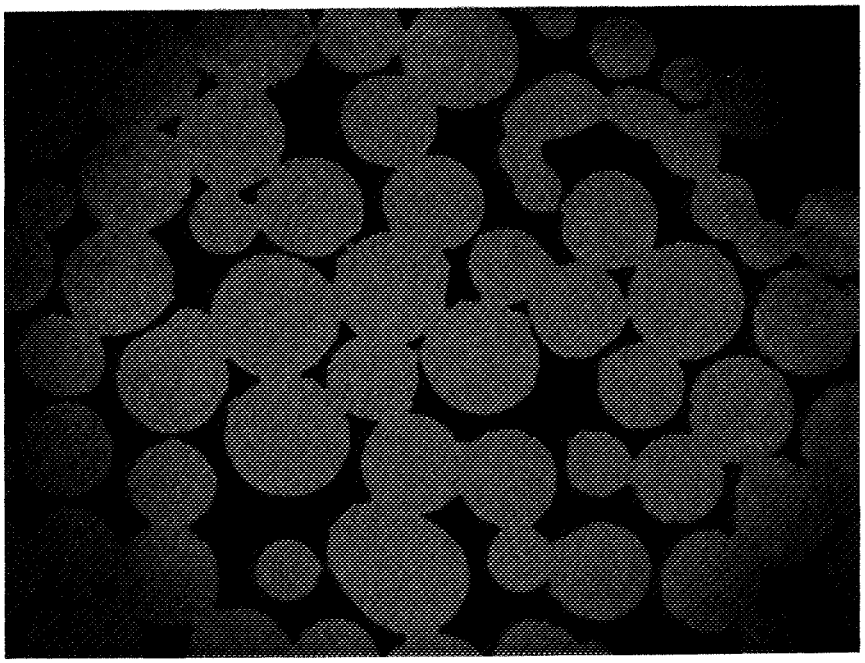
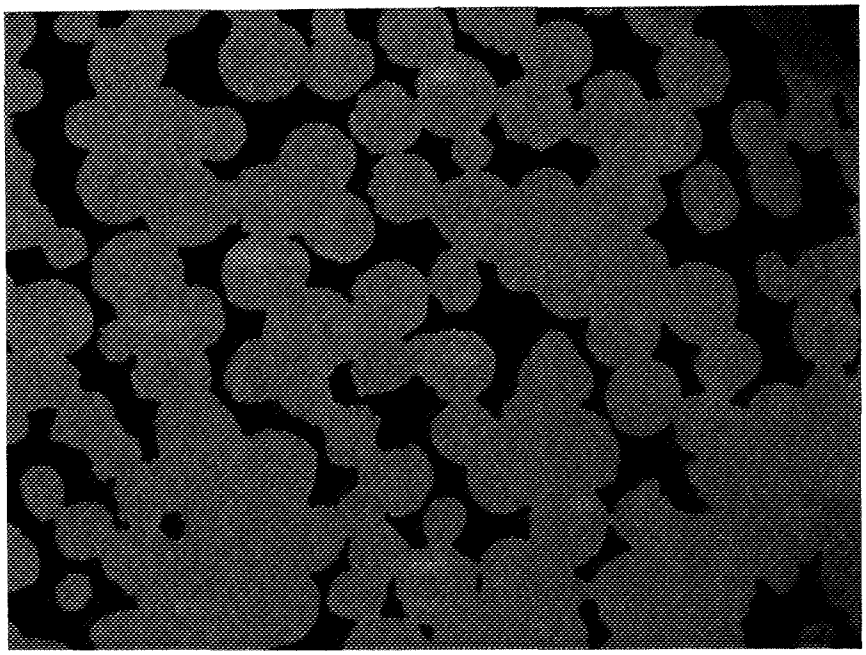


Figure C.II.4.b. : Images binaires issues d'une section réalisée sur des empilements consolidés ($\phi_{AI} \approx 0,3$) de billes
1) de 55 µm de diamètre
2) de 300 µm de diamètre.
La longueur de l'image est égale à :
1) 0,54 mm
2) 2,2 mm.

1)



2)

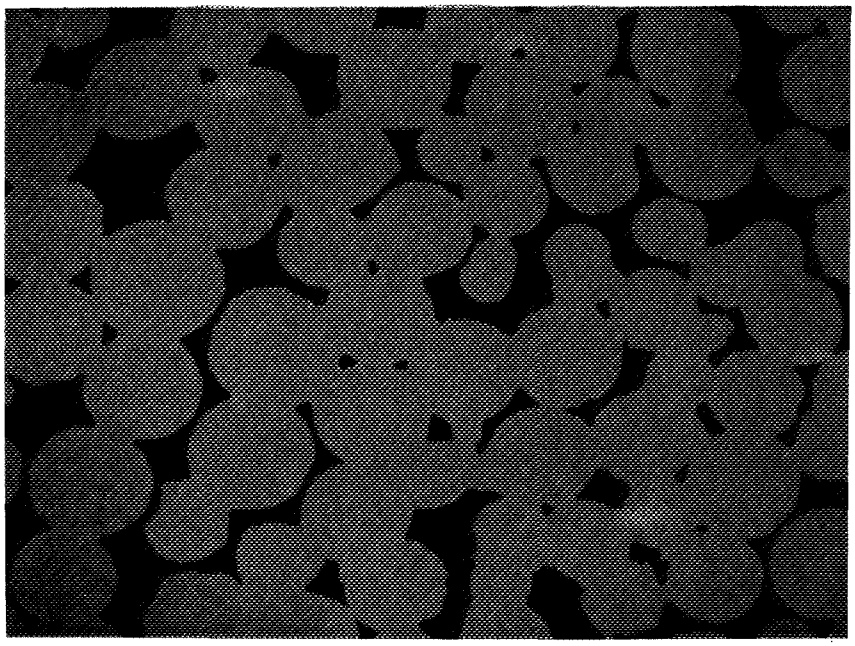
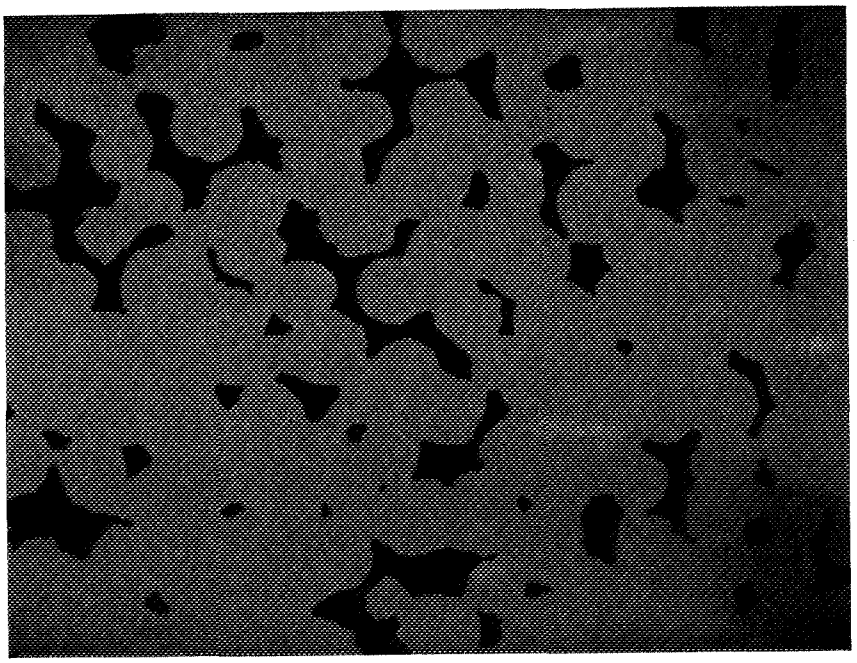


Figure C.II.4.c. : Images binaires issues d'une section réalisée sur des empilements consolidés ($\phi_{AI} \approx 0,2$) de billes
1) de 55 µm de diamètre
2) de 300 µm de diamètre.
La longueur de l'image est égale à :
1) 0,5 mm
2) 2,2 mm.

1)

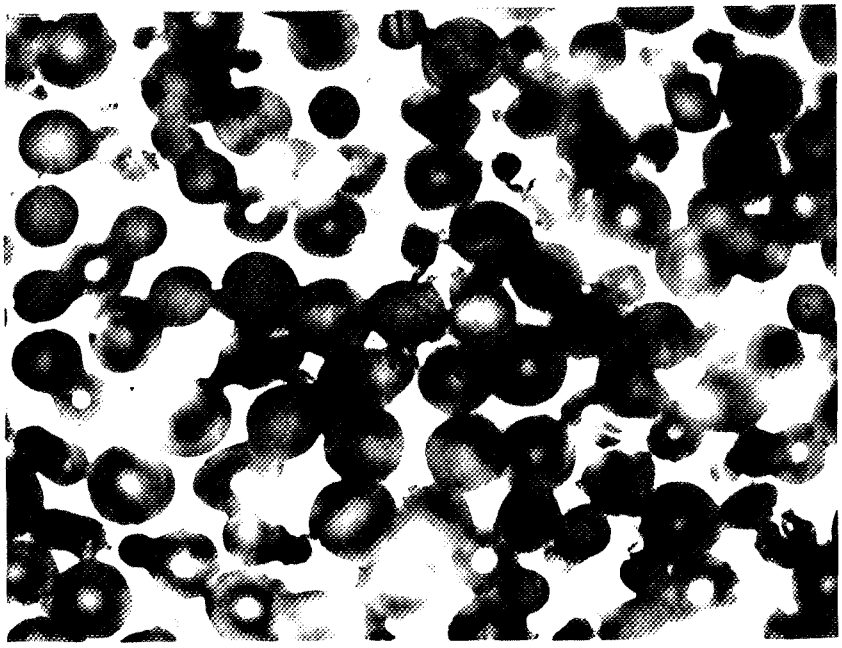


2)



Figure C.II.4.d. : Images binaires issues d'une section réalisée sur des empilements consolidés ($\phi_{AI} \approx 0,1$) de billes
1) de 55 µm de diamètre
2) de 300 µm de diamètre.
La longueur de l'image est égale à :
1) 0,5 mm
2) 2,2 mm.

a)



b)

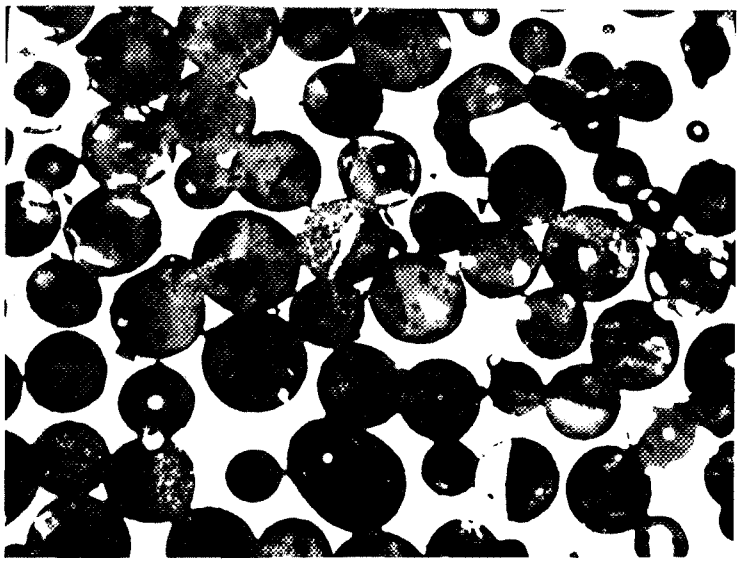


Figure C.II.5. : **Vue partielle d'une section polie traitée à l'acide fluorhydrique et réalisée sur des empilements non consolidés de billes :**
a) de 55 µm de diamètre
b) de 300 µm de diamètre.
La longueur de l'image représente :
1) 0,5 mm
2) 2,2 mm.

D. RESULTATS EXPERIMENTAUX : PRESENTATION ET INTERPRETATION

Les empilements consolidés ont été caractérisés géométriquement à l'aide des deux méthodes décrites précédemment après avoir analysé leurs propriétés d'écoulement puis leurs propriétés électriques. Avant de présenter les résultats concernant la caractérisation géométrique, nous allons nous intéresser à la caractérisation des billes de verre utilisées pour réaliser les empilements.

I. Caractérisation des billes de verre

Le seul renseignement indiqué par le fournisseur, concerne la densité De des billes : elle est de 2,49 quelle que soit leur taille.

La caractérisation effectuée dans notre laboratoire porte d'une part sur la granulométrie des billes obtenue après tamisage et d'autre part sur la composition chimique de ces billes.

1. Distributions granulométriques

Elles sont déduites des mesures faites, par analyse d'image, sur la phase granulaire des champs prélevés sur une coupe d'un empilement non fritté de billes de verre.

a. Distribution par ouverture linéaire (cf. § C.II.2.b.β. et δ.)

La distribution en nombre des intercepts a été établie, pour les billes de verre de diamètre D_{p_1}, pour des valeurs de l variant de 0 à 100 µm avec un pas de 5 µm. Sa valeur moyenne $\bar{l}_n$ et l'erreur faite sur la mesure de $\bar{l}_n$ conduisent d'après la relation C.II.15., à un diamètre moyen des particules $\overline{D}_{p_1}$ égal à 53,4 ± 0,4 µm.

Pour des billes de diamètre D_{p_2}, elle a été établie pour des valeurs de l variant de 0 à 800 µm avec un pas de 20 µm. Sa valeur moyenne conduit à un diamètre moyen des particules $\overline{D}_{p_2}$ égal à 292,9 ± 5,4 µm.

Dans les deux cas, le diamètre moyen des particules est un peu plus faible que la moyenne de la tranche. Ceci peut s'expliquer par le fait qu'au cours du tamisage, les particules de taille supérieure à l'ouverture du tamis correspondant à la limite supérieure de la tranche sont toutes éliminées. Par contre, des particules de taille inférieure à l'ouverture du tamis correspondant à la limite inférieure de la tranche granulométrique peuvent ne pas être éliminées lors du tamisage, conduisant ainsi à une valeur moyenne de la taille des particules plus faible que celle obtenue en faisant la moyenne arithmétique.

b. Distribution selon la méthode de Saltykov

Les résultats ainsi que leurs commentaires sont présentés en annexe 5.

Nous retiendrons que la répartition granulométrique du lot de billes de verre de diamètre D_{p_1} est parfaitement monomodale, centrée autour d'une valeur moyenne $\overline{D}_{p_1}$ = 55 µm. Par contre, dans le lot de billes de verre de diamètre D_{p_2}, figurent également de petites particules -de diamètre inférieur à 200 µm- qui ne sont pas passées au

travers des mailles du tamis. Elles sont sans doute responsables de la faible valeur de la taille moyenne obtenue : $\overline{D}_{p_2} = 280$ µm.

2. Composition chimique

Une analyse chimique des billes de verre de diamètre D_{p_1} et D_{p_2} a été effectuée au Service Central d'Analyse du C.N.R.S. de Lyon. Les éléments essentiels supposés intervenir dans la composition des billes tels que le silicium, le sodium, le calcium, le magnésium, le potassium, le fer et l'aluminium, ont été dosés. Présentés sous forme d'oxydes, ils conduisent aux teneurs indiquées dans le tableau D.I.1. Les résultats montrent que la composition chimique des billes diffère selon leur taille : les particules de diamètre D_{p_2} sont beaucoup plus riches en silice que celles de diamètre D_{p_1}. Cette différence de composition explique la différence de comportement observée face à l'acide fluorhydrique (annexe 6).

Tous les éléments n'ayant pas été dosés, il n'est pas surprenant de constater que la composition chimique des billes de diamètre D_{p_1} n'est pas parfaitement connue.

% massique	SiO_2	Na_2O	CaO	MgO	Al_2O_3	K_2O	Fe_2O_3	ZnO
D_{p_1}	57,4	12,7	9,4	3,7	0,9	0,5	0,3	< 0,1
D_{p_2}	74,6	12,5	9,2	3,8	0,7	0,2	0,2	< 0,1

Tableau D.I.1. : Composition chimique des billes de verre.

II. Caractérisation des empilements consolidés par porosimétrie au mercure

Nous rappelons que seuls les empilements consolidés réalisés à partir des billes de verre de diamètre D_{p_1} ont pu être caractérisés par cette méthode (cf. § C.I.3.). Chacune des grandeurs accessibles par cette technique (cf. § C.I.2.) fait l'objet des paragraphes suivants.

1. Caractérisation de l'espace poreux

a. Porosité

Avant toute chose, il est bon de remarquer (Figure D.II.1.) que la porosité ϕ_{Hg} mesurée par porosimétrie au mercure est quasiment identique à celle obtenue au L.C.P.C. : ϕ_{Hg} est très légèrement inférieure à ϕ'. Ce léger écart est acceptable et montre que la technique de pesée utilisée pour mesurer ϕ' est fiable.

b. Distribution de taille de pores

Elle présente une allure globalement identique d'un échantillon à l'autre (Figure D.II.2.) : dans tous les cas, elle est monomodale et étroite. Le domaine de variation des rayons d'entrée des pores est fonction de la porosité globale de l'échantillon. Il s'étend entre 7 et 15 µm pour des porosités de l'ordre de 0,30 et entre 0,1 et 5 µm pour des porosités voisines de 0,10.

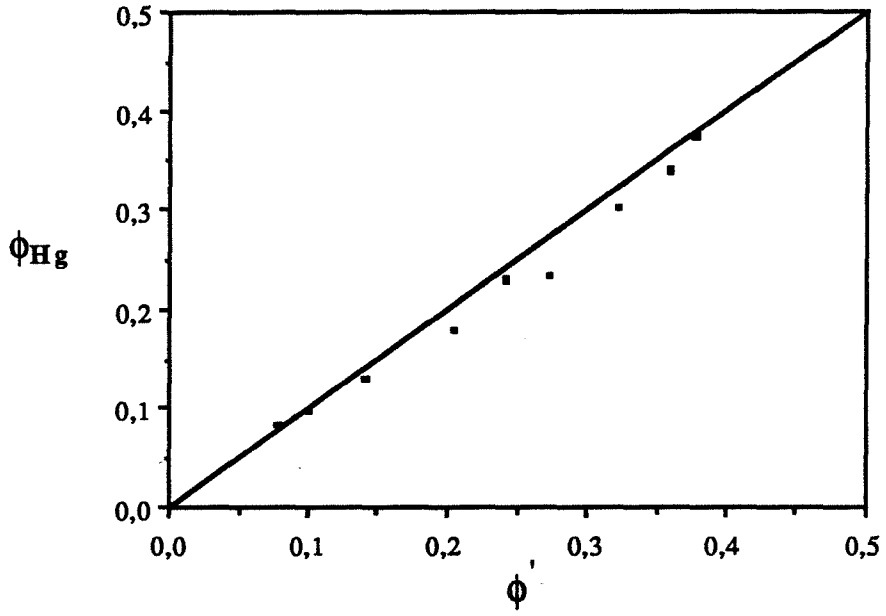


Figure D.II.1. : Variation de la porosité ϕ_{Hg} mesurée par porosimétrie au mercure en fonction de celle obtenue au L.C.P.C. sur les échantillons de la série I ($50 < D_{p_1} < 62$ µm). La droite représentée correspond à la première bissectrice.

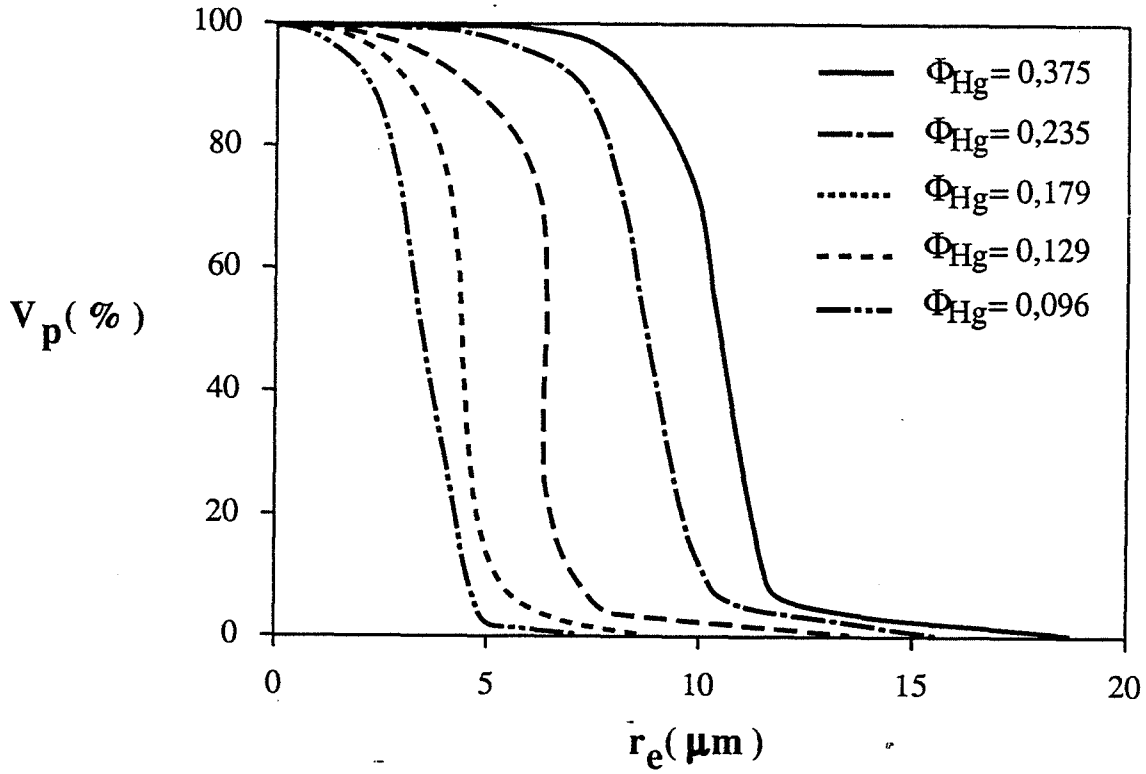


Figure D.II.2. : Distributions de taille de pores, obtenues par porosimétrie au mercure, des échantillons de la série I ($50 < D_{p_1} < 62$ µm).

Par ailleurs, le rayon d'entrée moyen $\bar{r}_e$ diminue linéairement (il est divisé par 3 environ) lorsque la porosité ϕ_{H_g} décroît de 0,40 à 0,10 (Figure D.IV.1.c.) alors que l'écart type σ (r_e) de la distribution de taille de pores demeure constant (voisin de 0,16 µm) pour des porosités variant de 0,35 à 0,25 puis diminue (de 0,16 à 0,08 µm) lorsque la porosité passe de 0,25 à 0,10.

c. Interprétation

Cette dernière observation laisse supposer que la distribution de taille de pores ne fait que se décaler vers des rayons de pores plus petits lorsque la porosité décroit de 0,40 à 0,25 : ainsi, dans ce domaine de porosité, tout se passe comme si la structure des empilements frittés résultait d'un rapprochement (isotrope) des particules de l'empilement non consolidé initial, pouvant conduire, dans certains cas, à la formation puis à la croissance de cous entre les grains.

La poursuite d'un tel phénomène dans un domaine où la porosité est plus faible (de 0,25 à 0,10), n'est pas incompatible avec les résultats observés. En effet, au-delà d'une distance critique, le rapprochement des particules entre elles peut rendre inaccessible au mercure, certaines cavités poreuses résultant de l'accolement de plusieurs grains ou de plusieurs amas, conduisant ainsi à une diminution, de plus en plus sensible, de l'écart-type de la distribution.

2. Caractérisation de l'interface

Elle est déduite de la mesure, moyennant un modèle de la forme des pores, de la surface volumique du solide S'_V. Cette dernière, dans le cas d'un modèle cylindrique, demeure constante pour des porosités comprises entre 0,40 et 0,25 puis diminue lorsque la porosité passe de 0,25 à 0,10 (Figure D.IV.2.a.).

Aucune interprétation de cette variation ne sera donnée : elle n'a d'intérêt que pour la comparaison des résultats obtenus par analyse d'image qui, eux, sont déduits d'une mesure directe (Figure D.IV.3.).

3. Conclusion

La caractérisation des empilements consolidés par porosimétrie au mercure montre que le rayon moyen $\bar{r}_e$ d'entrée des pores décroît linéairement lorsque la porosité diminue, alors que, dans les mêmes conditions, la surface volumique du solide S'_V et l'écart type des distributions de taille de pores σ (r_e) restent constants pour des porosités supérieures à 0,25 puis diminuent si la porosité passe de 0,25 à 0,10.

III. Caractérisation des empilements par analyse d'image

Tous les empilements, consolidés ou non, réalisés à partir des billes de verre de diamètre D_{p_1} et D_{p_2} ($50 < D_{p_1} < 62$ µm et $290 < D_{p_2} < 320$ µm) ont été caractérisés par cette

méthode. Toutes les grandeurs mesurées par cette méthode, à l'exception de la surface volumique du solide, ont été évaluées en privilégiant la phase poreuse (ainsi, les notations de la partie C.II. pourront être simplifiées : la phase X n'apparaitra plus) et en utilisant soit nos propres logiciels (pour ce qui est de la distribution de taille par ouverture bidimensionnelle et de la courbure moyenne) soit ceux présentés par Missiaen (thèse, p. 203).

Dans cette partie, les résultats proposés sont répertoriés tout d'abord selon la phase qu'ils caractérisent (phase poreuse ou interface pore-grains). Chaque grandeur retenue est ensuite évaluée dans le cas des échantillons de la série I puis de la série II. Sa valeur mesurée sur les empilements non consolidés de billes de verre de diamètre D_{p1} et D_{p2} réalisés au Laboratoire et non au L.C.P.C., est également reportée si possible ; elle correspond à des porosités de 0,41 et 0,38 respectivement.

1. Caractérisation de l'espace poreux

a. Porosité

Dans le cas des empilements consolidés de la série I, la porosité mesurée par analyse d'image ϕ_{AI} diffère légèrement de celle obtenue par le L.C.P.C. (Figure D.III.1.a.). Les écarts (inférieurs à 5 %) observés dans certains cas, sont vraisemblablement liés à la médiocre qualité des images vidéo obtenues sur les échantillons de cette série (cf. § C.II.3.c.).

Dans le cas des échantillons consolidés de la série II, la porosité ϕ_{AI} est identique à ϕ' (généralement inférieure à ϕ') (Figure D.III.1.b.).

Ces deux remarques illustrent l'importance prise par la qualité des images vidéo dans une telle technique.

b. Distribution de taille de pores obtenue par ouverture linéaire

Quelle que soit la porosité de l'échantillon, de la série I ou II, cette distribution est monomodale et d'autant plus étendue que la porosité est élevée (cf. Figures D.III.2. et 3.). Elle a été établie à partir d'au moins 10 points (respectivement 20 points) de mesure pour les échantillons de la série I (respectivement II).

α. Intercept moyen et écart type

Cependant, l'évolution, en fonction de la porosité, de l'intercept moyen $\bar{l}$ et de l'écart type de la distribution diffère d'une série à l'autre d'échantillons.

Dans le cas des échantillons de la série I ($50 < D_{p1} < 62$ µm), l'intercept moyen $\bar{l}$ reste constant pour des fortes porosités ($0,35 < \phi_{AI} < 0,40$) puis chute brutalement lorsque la porosité décroît de 0,35 à 0,20 pour atteindre, semble-t-il, une valeur limite pour des porosités inférieures à 0,20 (cf. Figure D.IV.2.a.). L'écart type σ (l) de cette distribution suit les mêmes variations, en fonction de la porosité, que $\bar{l}$: pour des fortes porosités, il est de l'ordre de 30 µm, pour les faibles porosités, il oscille autour de 20 µm.

Dans le cas des échantillons de la série II, l'intercept moyen $\bar{l}$, de même que l'écart type σ (l) de la distribution, décroît linéairement lorsque la porosité diminue de 0,40 à 0,10 (cf. Figure D.III.4.a.) : $\bar{l}$ est divisé par 2 alors que σ (l) passe de 150 à 70 µm. Un résultat analogue a été observé par Coronel (p. 42) lors du frittage de billes de verre de 100 µm environ.

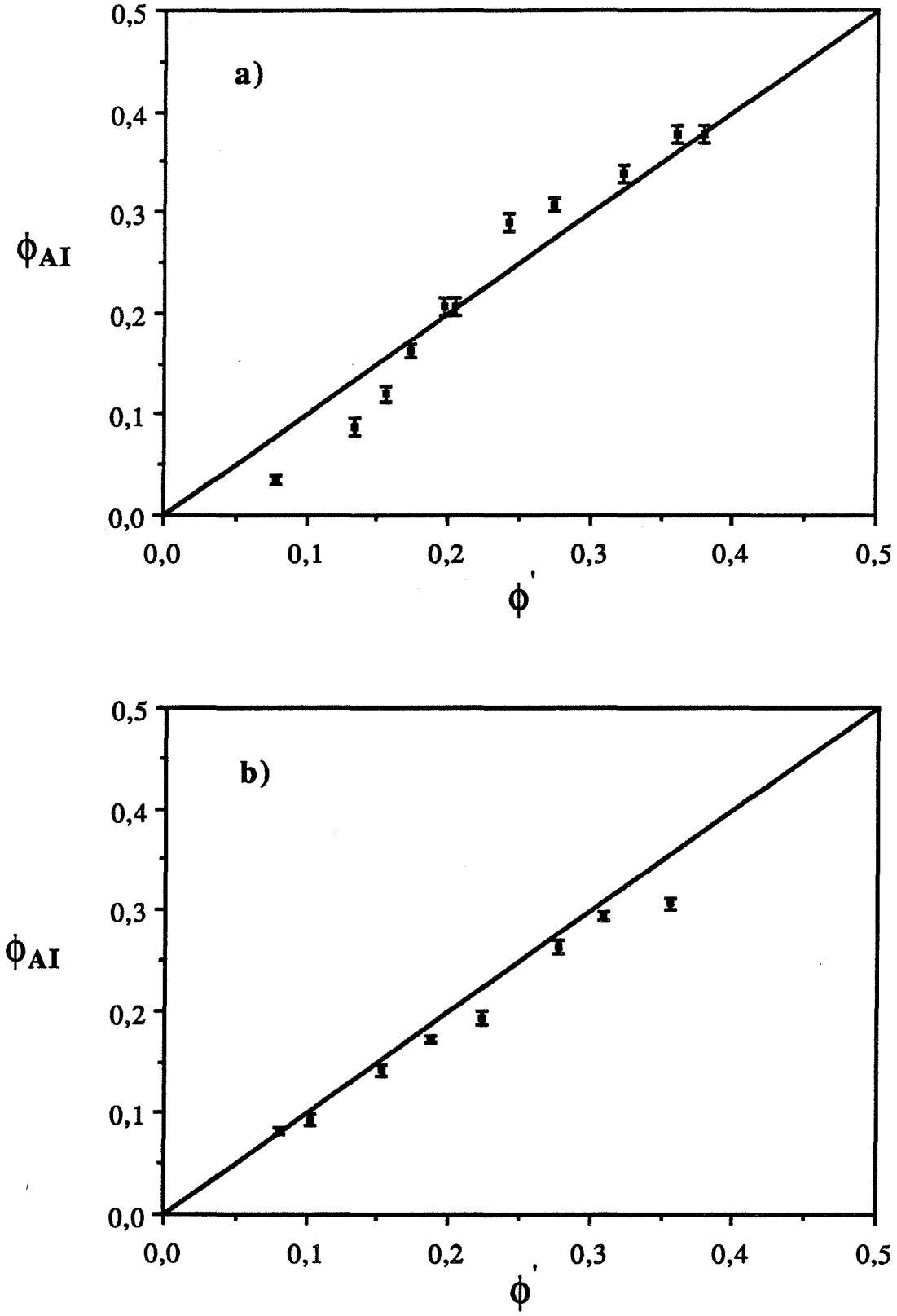


Figure D.III.1. : Variation de la porosité mesurée par A.I. en fonction de ϕ' dans le cas des échantillons des séries I (a) et II (b). La droite représentée correspond à la première bissectrice.

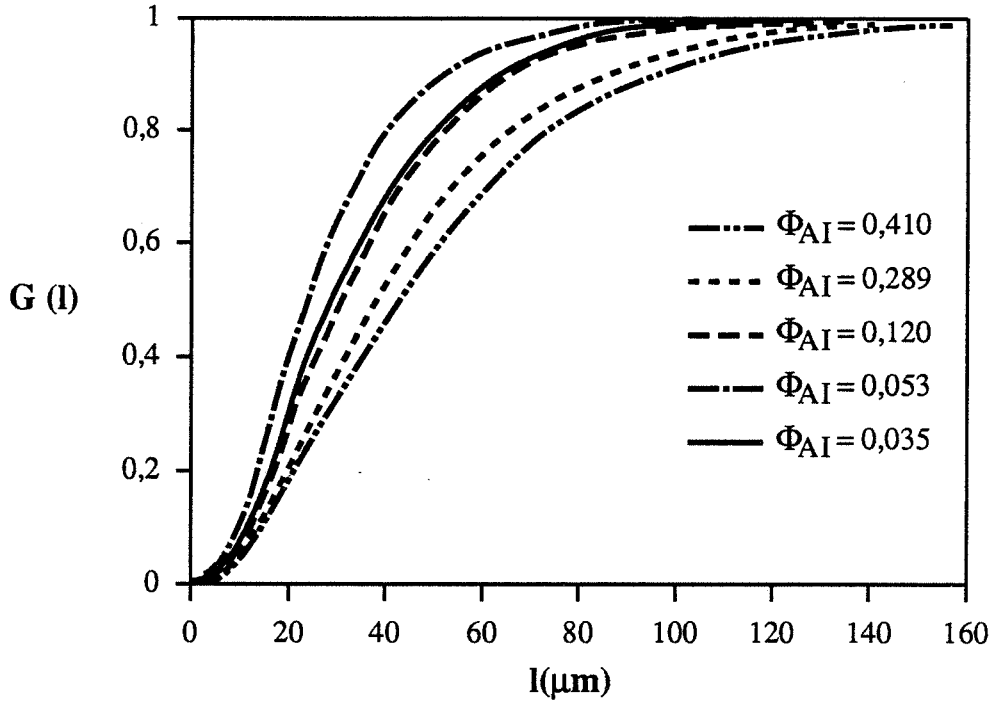


Figure D.III.2. : Distributions de taille de pores obtenues par ouverture linéaire sur l'espace poreux des échantillons de la série I ($50 < D_{p_1} < 62$ μm) de porosité ϕ_{AI}.

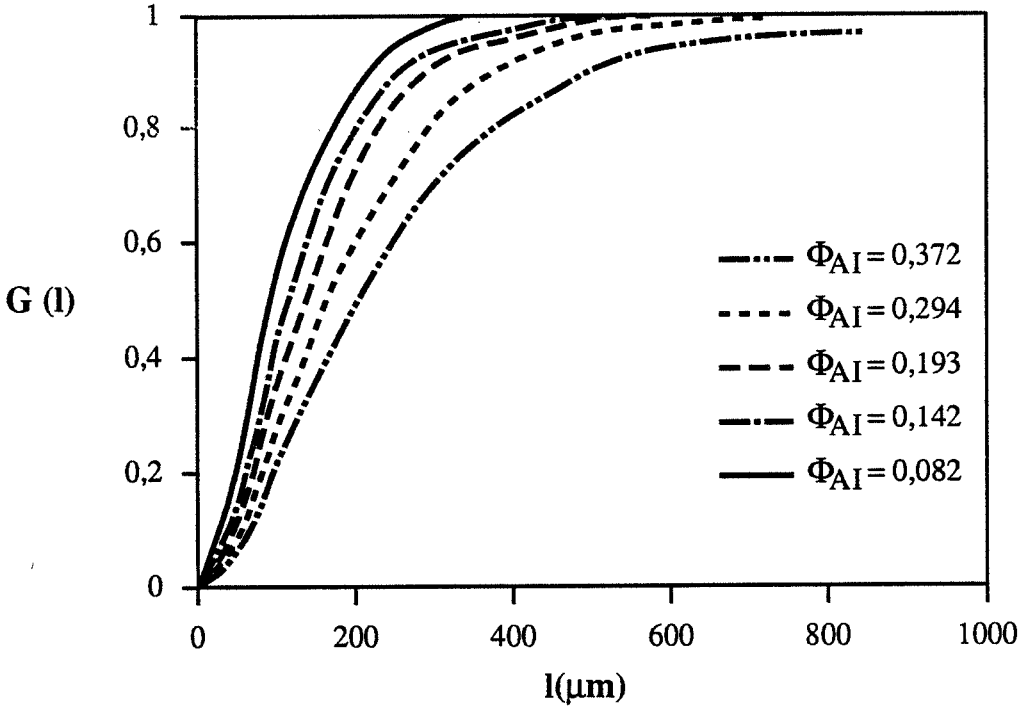


Figure D.III.3. : Distributions de taille de pores obtenues par ouverture linéaire sur l'espace poreux des échantillons de la série II ($290 < D_{p_2} < 320$ μm) de porosité ϕ_{AI}.

β. La fonction étoile

Son évolution en fonction de ϕ_{AI} diffère elle aussi notablement d'une série à l'autre. Dans le cas des échantillons de la série I, la fonction étoile St varie, en fonction de la porosité, de la même façon que $\bar{I}$: elle oscille autour de 350.10^3 μm^3, lorsque la porosité passe de 0,40 à 0,35, puis décroît linéairement de 350 à 150.10^3 μm^3, lorsque la porosité diminue de 0,35 à 0,20 et semble ensuite demeurer constante ($\approx 10^5$ μm^3) pour des porosités inférieures à 0,20. Dans le cas des échantillons de la série II, la fonction étoile diminue avec la porosité, d'abord brutalement de 60 à 20.10^6 μm^3 lorsque la porosité passe de 0,40 à 0,30 puis lentement (de 20.10^6 μm^3 à 0) pour des porosités comprises entre 0,30 et 0,10.

L'étude de la distribution de taille de pores par ouverture linéaire met en évidence une nette différence de l'évolution de la texture poreuse en fonction de la porosité globale, des échantillons de la série I et II. Afin de vérifier que cette différence est indépendante de la méthode de caractérisation, essayons maintenant d'analyser la texture poreuse par une autre méthode, en établissant pour chaque échantillon, la distribution de taille de pores obtenue par ouverture bidimensionnelle.

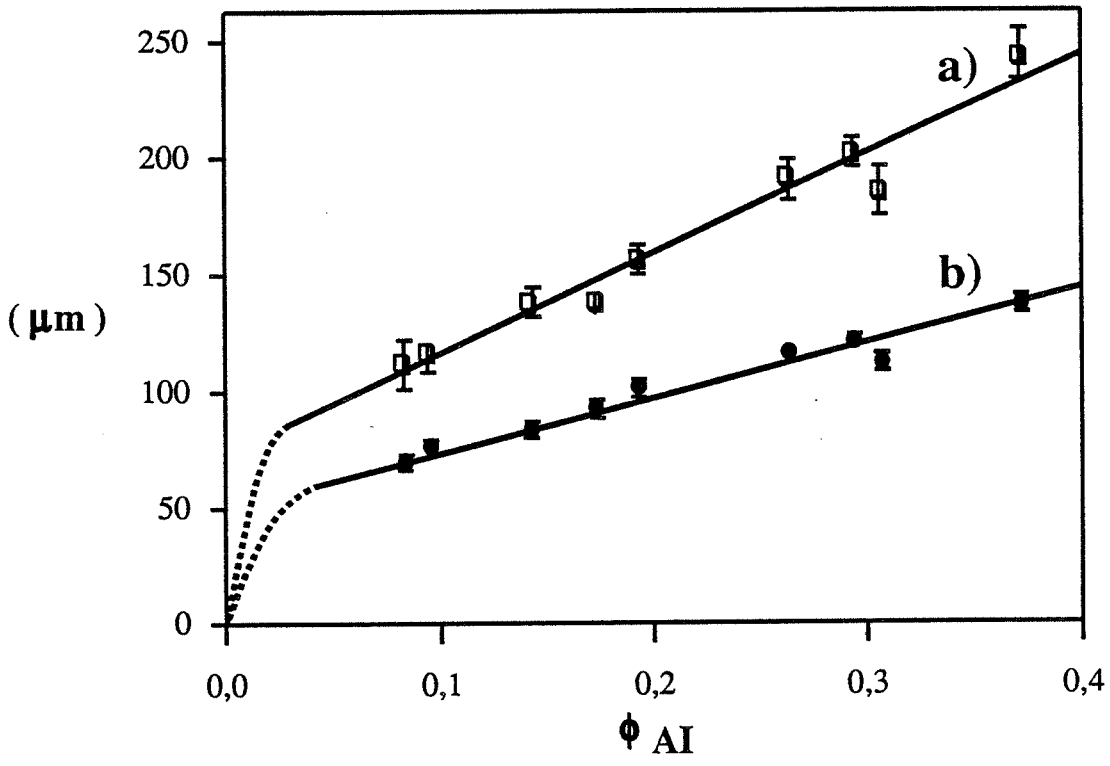


Figure D.III.4. : Variation, en fonction de la porosité mesurée par A.I., de l'intercept moyen $\bar{I}$ (a) et du diamètre moyen $\bar{\delta}$ du disque inclus (b) de l'espace poreux des échantillons de la série II ($290 < D_{p_2} < 320$ µm).

c. Distribution de taille de pores obtenue par ouverture bidimensionnelle

Ici aussi, quelles que soient la porosité de l'échantillon et la série à laquelle il appartient, la distribution présente la même allure que celle obtenue par ouverture linéaire. Elle est monomodale ; elle est d'autant plus étendue que la porosité est élevée.

Là encore, l'évolution, en fonction de la porosité, du diamètre moyen $\bar{\delta}$ du disque inclus diffère d'une série à l'autre. Pour la série I, $\bar{\delta}$ reste constant lorsque la porosité passe de 0,40 à 0,35 puis diminue lorsque la porosité décroît de 0,35 à 0,20 et oscille autour d'une valeur limite quand la porosité est inférieure à 0,20 (Figure D.IV.2.b.). Pour la série II, $\bar{\delta}$ décroît linéairement lorsque la porosité diminue. Il est divisé par 2 environ si la porosité passe de 0,40 à 0,10 (Figure D.III.4.b.).

Le tracé de la courbe $\sigma(\delta)$ en fonction de ϕ_{AI}, non rapporté ici, montre qu'ici aussi, l'écart type de la distribution suit le même type de variation que le diamètre moyen $\bar{\delta}$ correspondant. Dans le cas de la série I, $\sigma(\delta)$ oscille autour de 15 µm pour des fortes porosités puis décroît pour tendre vers 11 µm à partir des porosités inférieures à 0,20.

Dans le cas de la série II, $\sigma(\delta)$ diminue linéairement (de 60 à 40 µm) lorsque la porosité passe de 0,40 à 0,10.

d. Conclusion

Quelle que soit la méthode de caractérisation utilisée, la texture poreuse évolue, en fonction de la porosité, de façon différente d'une série d'échantillons à l'autre.

Dans le cas des échantillons de la série I, trois domaines de porosité sont à distinguer. Deux à l'intérieur desquels la texture poreuse n'évolue pas ou peu en fonction de la porosité, correspondent à des porosités comprises entre 0,35 et 0,40 d'une part et entre 0,10 et 0,20 d'autre part ; la texture poreuse est bien entendu différente d'un domaine à l'autre. Le troisième domaine permet de passer de façon continue de la texture du début de frittage à celle obtenue en fin de frittage : il correspond à des porosités comprises entre 0,20 et 0,35.

Dans le cas des échantillons de la série II, la texture poreuse évolue de façon continue et monotone en fonction de la porosité. L'intercept moyen $\bar{I}$ et le diamètre moyen du disque inclus $\bar{\delta}$ sont divisés par deux environ lorsque la porosité décroît de 0,40 à 0,10.

Cette différence de comportement ne peut être totalement attribuée, à notre avis, aux difficultés rencontrées lors de l'acquisition des images caractérisant les échantillons de la série I. Elle peut être également liée au mode de préparation des échantillons. Même si ce dernier est identique pour tous les échantillons, il peut rendre possible certains types de réarrangements dans un cas et pas dans l'autre. Prenons pour exemple les effets de voûte : ne se formeraient-ils pas plus facilement (donc ne seraient-ils pas plus probables ?) à l'intérieur d'un empilement de billes de faible taille que dans un empilement de grosses particules sphériques ? Si tel était le cas, non seulement l'existence des valeurs limites de $\bar{I}$ et $\bar{\delta}$ obtenues pour des porosités inférieures à 0,20 mais aussi celle du palier observé pour de fortes valeurs de ϕ_{AI} sur les

courbes $\bar{l}\ (\phi_{AI})$ et $\bar{\delta}\ (\phi_{AI})$ seraient justifiées : si les voûtes sont instables mécaniquement, des réarrangements peuvent intervenir au début du frittage ; si au contraire, elles sont stables, même après frittage, des cavités poreuses isolées peuvent demeurer.

Voyons maintenant si cette différence d'évolution en fonction de la porosité, de la texture poreuse entre les échantillons de la série I et II se retrouve sur la variation des grandeurs caractérisant l'interface.

2. Caractérisation de l'interface

Elle est obtenue ici par deux mesures :

- la surface volumique du solide S_V' définie comme le rapport de la surface des grains et du volume des grains
- la courbure moyenne évaluée en privilégiant la phase poreuse

a. La surface volumique du solide : S_V'

α. Résultats expérimentaux

Quelle que soit la série étudiée, S_V' décroît linéairement avec la porosité (figure D.III.5.). Un léger décalage à la droite expérimentale est toutefois visible pour des échantillons de la série I de forte porosité, de même qu'un léger décalage de l'ordonnée à l'origine est observé uniquement dans le cas de la série II. En toute rigueur, la droite doit passer par l'origine.

Une approche semi-empirique consiste à dire que le coefficient de la droite $S_V'(\phi_{AI})$, est égal à $\frac{3}{\left(\bar{R}_p \phi^0\right)}$ si ϕ^0 est la porosité de l'empilement non consolidé. En effet, il est facile d'établir que $S_V'^{,0} = \frac{3}{\bar{R}_p}$ avant frittage. Dans ces conditions, nous avons établi la loi semi-empirique suivante, établie dans le cas d'empilements de billes de verre uniquement :

$$S_V' = \frac{3}{\bar{R}_p} \frac{\phi}{\phi^0} \qquad \text{(D.III.1.)}$$

dans laquelle : S_V' = surface de grains/volume de grains

$\bar{R}_p$: rayon moyen des particules constituant l'empilement initial

ϕ, ϕ^0 : porosités de l'empilement consolidé et avant frittage.

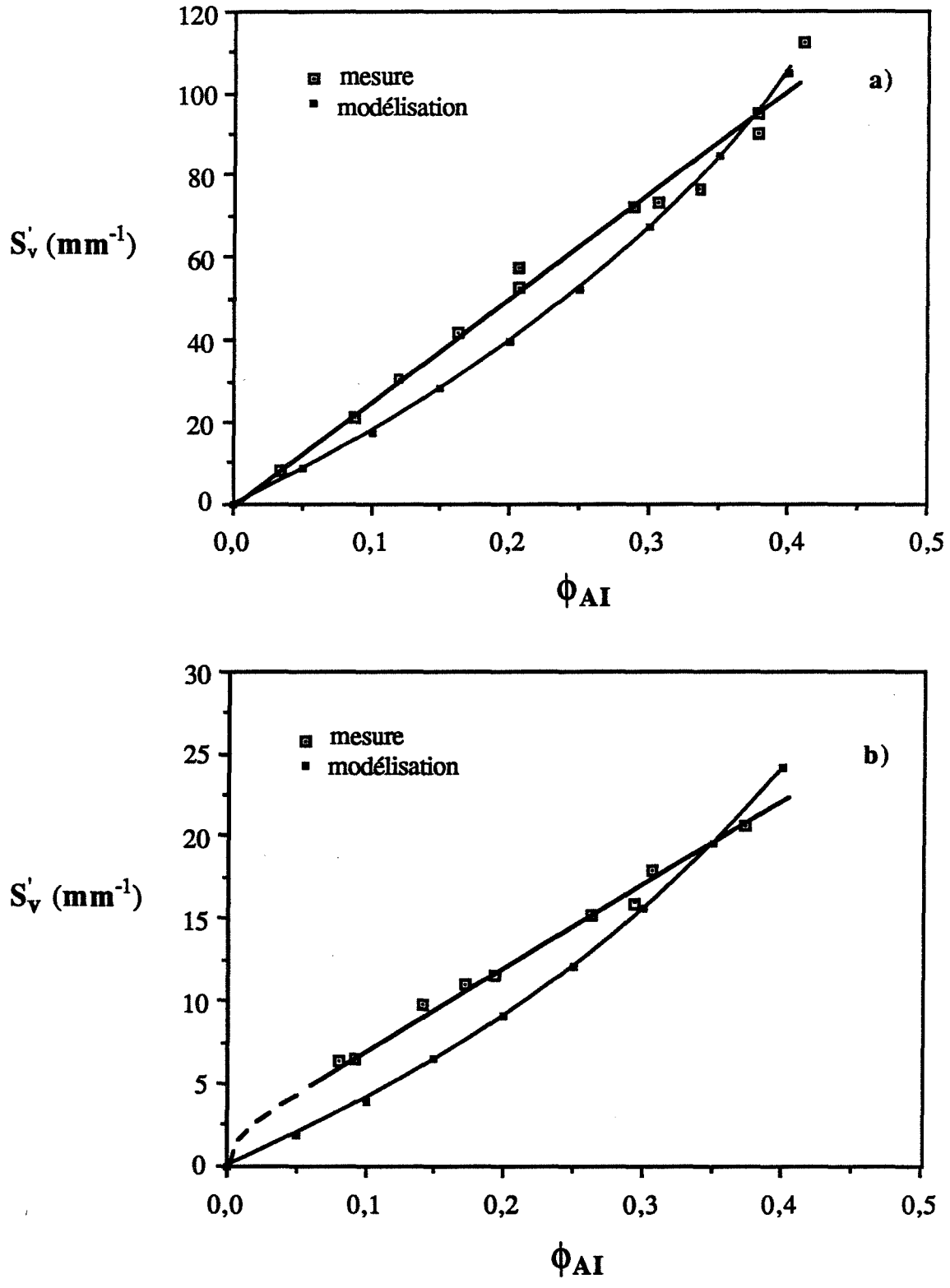


Figure D.III.5. : Variation, en fonction de la porosité mesurée par A.I., de la surface volumique du solide S'_V obtenue par A.I. sur les échantillons des séries I (a) et II (b). Comparaison des courbes expérimentale et déduite du modèle.

β. Modélisation

Dans le seul but de comprendre la variation de S_V en fonction de la porosité, nous avons cherché à modéliser, d'un point de vue purement géométrique, la réaction de frittage.

Pour ce faire, nous considérons que l'empilement initial (avant frittage) est constitué de N_b billes identiques, de rayon R_p. Par la suite, nous attribuerons l'exposant 0 aux grandeurs correspondant à l'empilement initial, les grandeurs sans exposant correspondent à l'empilement fritté. Les volumes poreux et granulaire de l'empilement initial sont alors notés V_p^0 et V_g^0 :

$$V_g^0 = N_b \cdot \frac{4}{3}\pi (R_p)^3 \qquad \text{(D.III.2.)}$$

A chaque particule élémentaire, noté <1>* est associé un volume poreux élémentaire $V_{p/g}^0$ noté $<>_1$ avec :

$$V_{p/g}^0 = \frac{1}{N_b} V_p^0$$

Nous utiliserons la notation suivante $<1> \equiv <1>^* + <>_1$ dans laquelle <1> représente l'ensemble d'une particule et son espace poreux élémentaire associé.

Nous supposons alors que la diminution de la porosité qui résulte du frittage est due à la disparition successive de chacun des volumes poreux élémentaires présents dans l'empilement initial. Ainsi, nous schématiserons le phénomène de frittage comme la succession de réactions suivante :

$<1> + <1>^* \rightarrow <2>^* + <>_1$

$<1> + <2>^* \rightarrow <3>^* + <>_1$

$<1> + <i>^* \rightarrow <i+1>^* + <>_1$

$<1> + <N_b - 1>^* \rightarrow <N_b>^*$

où <i>* est un amas supposé sphérique et compact formé par l'accolement de i billes élémentaires.

Le bilan de la réaction qui permet, dans de telles conditions, de passer de l'empilement initial (non consolidé) à l'empilement final (consolidé) supposé résulter de la disparition de i volumes poreux élémentaires s'écrit donc :

$$(N_b - 1)\,<1> + <1>^* + <>_1 \rightarrow (N_b - i)\,<1> + <i>^*$$

A partir de l'équation de conservation de la matière, nous obtenons :

$$R_{p_i} = i^{1/3} R_p \qquad \text{(D.III.4.)}$$

où R_{p_i} est le rayon de l'amas constitué de i billes.

Par définition et en utilisant l'équation (D.III.2.), nous avons :

$$S_V' = \frac{(N_b - i)\, 4\pi R_p^2 + 4\pi R_{p_i}^2}{N_b \cdot \frac{4}{3}\pi R_p^3}$$

Soit, après substitution et simplification :

$$S_V' = \frac{3}{R_p}\left[1 - \frac{i}{N_b}\left(1 - \frac{1}{i^{1/3}}\right)\right] \qquad \text{(D.III.5.)}$$

En supposant : $1 >> i^{-1/3}$, nous pouvons écrire :

$$S_V' = \frac{3}{R_p}\left[1 - \frac{i}{N_b}\right] \qquad \text{(D.III.6.)}$$

Cette hypothèse sera discutée par la suite (en remarque). Cherchons maintenant la relation entre S_V' et ϕ : pour cela, il faut relier i et ϕ. Pour ce faire, écrivons que la variation ΔV du volume total de l'empilement au cours du frittage est égale d'une part à i fois le volume poreux élémentaire $V_{p/g}^0$ (par hypothèse) et d'autre part à la variation du volume poreux (le volume granulaire ne variant pas). Ainsi :

$$\Delta V = -i\, V_{p/g}^0 \qquad \text{(D.III.7.)}$$

$$\Delta V = V_p - V_p^0 \qquad \text{(D.III.8.)}$$

Ces deux équations conduisent à : $$-\frac{i}{N_b} = \frac{\phi - \phi^0}{\phi^0 (1 - \phi)} \qquad \text{(D.III.9.)}$$

et : $$S_V' = \frac{3}{R_p} \frac{(1 - \phi^0)}{(1 - \phi)} \frac{\phi}{\phi^0} \qquad \text{(D.III.10.)}$$

ou encore : $$S'_V = S'^{0}_V \frac{(1-\phi^0)}{(1-\phi)} \frac{\phi}{\phi^0} \qquad \text{(D.III.11.)}$$

Les courbes expérimentales et théoriques de variation de S'_V en fonction de ϕ sont présentées sur la figure D.III.5. Elles ont été établies, en prenant respectivement les valeurs expérimentales de $\overline{R}_p$ et de ϕ^0 (pour la série I, $\overline{R}_{p_1} = 27{,}5$ µm et $\phi^0 = 0{,}41$; pour la série II, $\overline{R}_{p_2} = 140$ µm et $\phi^0 = 0{,}38$). Le modèle est semble-t-il mieux adapté pour les échantillons de la série I que pour ceux de la série II.

Remarque 1 : L'hypothèse $1 >> i^{-1/3}$ est toujours vérifiée, pour des porosités très proches de ϕ^0, si les empilements initiaux sont ceux du L.C.P.C. (et ce quelle que soit la taille des particules) ou ceux réalisés au laboratoire avec des billes de diamètre D_{p_1} uniquement. Cette hypothèse n'est plus valable si l'empilement est réalisé avec des particules de diamètre D_{p_2} selon le protocole du laboratoire.

Remarque 2 : Ce modèle, même s'il est proche de la réalité, est criticable à deux titres :

- d'une part, il conduit à une variation non linéaire de la surface volumique S'_V en fonction de la porosité
- d'autre part, il discrétise l'espace poreux supposant ainsi que le frittage s'effectue de façon discontinue.

Ces deux observations ne sont pas conformes aux phénomènes physiques. Cependant, le modèle proposé met en évidence les limites du modèle de "sphères tangentes" habituellement utilisé pour décrire la géométrie des empilements en début de frittage.

b. L'intégrale de courbure moyenne par unité de volume M_V

La variation de M_V en fonction de ϕ_{AI} est identique quelle que soit la série étudiée (figure D.III.6.) : M_V croît d'abord brusquement lorsque la porosité passe de 0,40 à 0,30 puis lentement lorsque la porosité diminue de 0,30 à 0,15. Ce changement de pente, plus marqué dans le cas de la série I que de la série II, coïncide avec le changement de signe de M_V. Pour des porosités inférieures à 0,15 et tendant vers 0, M_V décroît et tend vers la valeur 0, par définition (nous rappelons que $M_V = 2\pi N_A$: N_A étant le nombre de connexité par unité d'aire, est nul lorsque la phase poreuse a totalement disparu).

Des résultats similaires ont été présentés par Coronel (figure D.III.8.) et interprétés qualitativement en faisant intervenir différentes étapes dans l'évolution, en fonction de la porosité, de la géométrie de la texture poreuse. Cette interprétation ne sera pas reprise ici car nous estimons que les domaines d'existence des différentes géométries proposées sont trop peu marqués.

c. La courbure moyenne $\overline{H}$

Quelle que soit la série d'échantillons étudiée, la courbe de variation de $\overline{H}$ en fonction de ϕ_{AI} est identique : $\overline{H}$ croît brutalement lorsque la porosité passe de 0,40 à 0,30 puis lentement si la porosité diminue de 0,30 à 0,05. Le changement de pente, ici aussi plus marqué dans le cas des échantillons de la série I que de la série II, coïncide avec le changement de signe de la courbure des pores : ceux-ci sont concaves pour des porosités supérieures à 0,30 et convexes dans les autres cas.

La valeur limite prise par $\overline{H}$ quand la porosité est celle de l'empilement non consolidé est bien égale, dans les deux cas, à l'inverse du rayon moyen des sphères (cf. § C.II.2.a.β.).

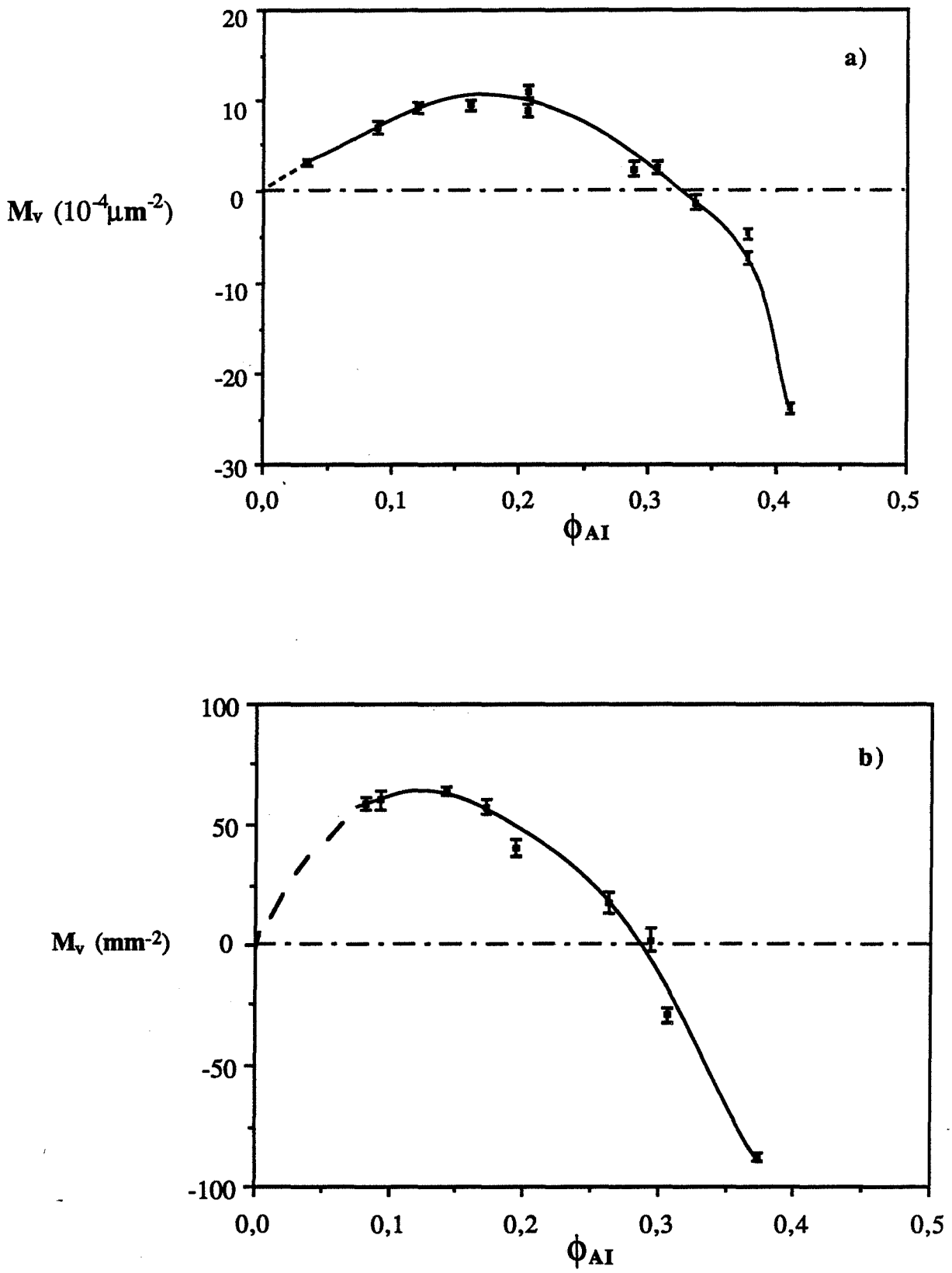


Figure D.III.6. : Intégrale de courbure moyenne par unité de volume, en fonction de la porosité mesurée par A.I. des échantillons des séries I (a) et II (b).

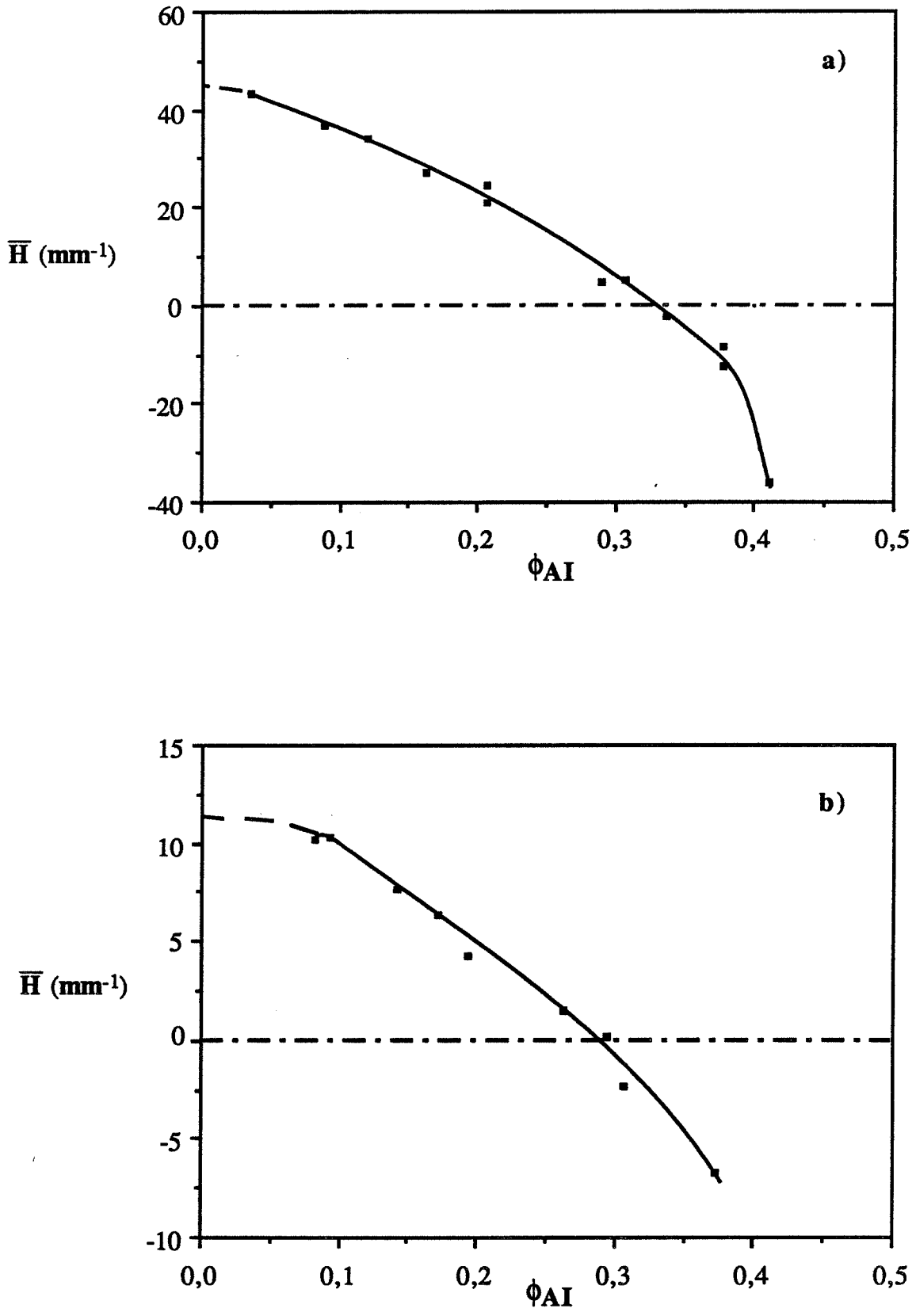
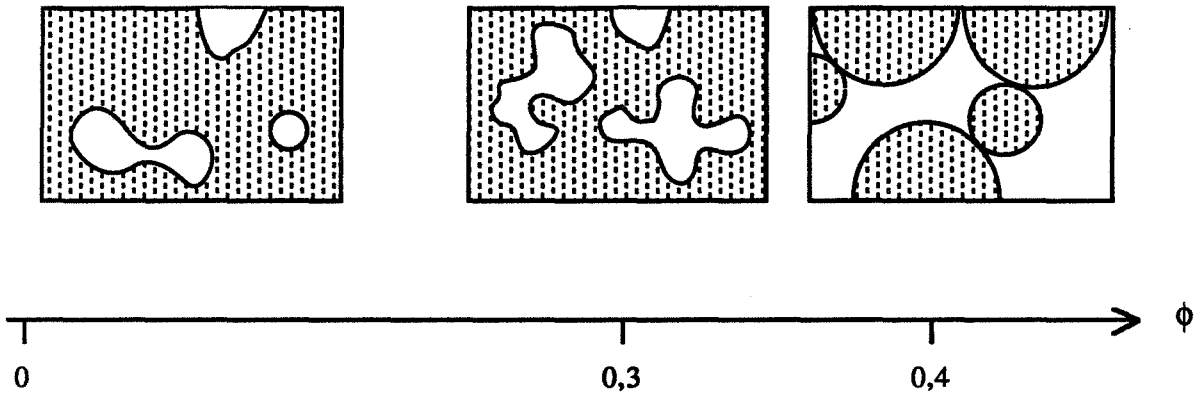


Figure D.III.7. : Courbure moyenne en fonction de la porosité mesurée par A.I. des échantillons des séries I (a) et II (b).

Afin de lever l'indétermination qui nous empêche pour l'instant, de connaitre la valeur limite vers laquelle doit tendre $\overline{H}$ lorsque la porosité tend vers 0, nous avons évalué les dérivées à l'origine des courbes expérimentales M_V (ϕ_{AI}) et S_V (ϕ_{AI}). Elles conduisent à une valeur limite de $\overline{H}$ égale à 43 mm^{-1} dans le cas de la série I (figure D.III.7.a.) et à 10,17 mm^{-1} dans le cas de la série II (figure D.III.7.b.). Dans les deux cas, cette valeur limite n'est pas infinie, laissant supposer l'existence de cavités poreuses. En les supposant sphériques, leur rayon moyen serait de l'ordre de 23 µm dans le cas de la série I (c'est-à-dire équivalentes à une particule granulaire initiale) et de 98 µm dans le cas de la série II (nettement inférieure à la taille d'une particule initiale).

Cette étude montre donc qu'au cours du frittage, l'espace poreux est concave (pour des fortes porosités) puis convexe. A la fin du frittage peuvent subsister des cavités poreuses, sans doute peu nombreuses. Un tel comportement peut se schématiser ainsi :



d. Conclusion

L'évolution, en fonction de la porosité, des grandeurs caractérisant l'interface pore/solide, contrairement à celle caractérisant l'espace poreux, est indépendante de la taille des billes utilisées. Il semble même qu'elle soit caractéristique du matériau. En effet, tous nos résultats concernant les variations S'_V (ϕ_{AI}) et M_V (ϕ_{AI}) sont en bon accord avec ceux obtenus par Coronel (p. 43) lors du frittage de billes de verre de 100 µm de diamètre. Par contre, ils diffèrent notablement de ceux observés lors du frittage d'une poudre métallique (le bronze). Dans ce cas, la variation de S'_V et de M_V en fonction de ϕ_{AI} présente une allure différente.

Dans le cas du frittage d'une poudre métallique, la variation de M_V (ϕ_{AI}) met en évidence des domaines de porosité à l'intérieur desquels l'intégrale de courbure moyenne par unité de volume varie peu ou au contraire (figure D.III.8.) beaucoup. Ces domaines pourraient être étroitement liés aux différents phénomènes géométriques qui apparaissent lors du frittage (croissance des cous, coalescence des grains, etc...).

Ainsi, la caractérisation par analyse d'image des échantillons semble montrer d'une part que l'évolution en fonction de la porosité des grandeurs caractéristiques de l'interface est fonction de la nature du matériau et d'autre part, que l'espace poreux est lié à la structure géométrique de l'empilement initial. Ces conclusions nécessitent bien évidemment d'autres études expérimentales pour être étayées.

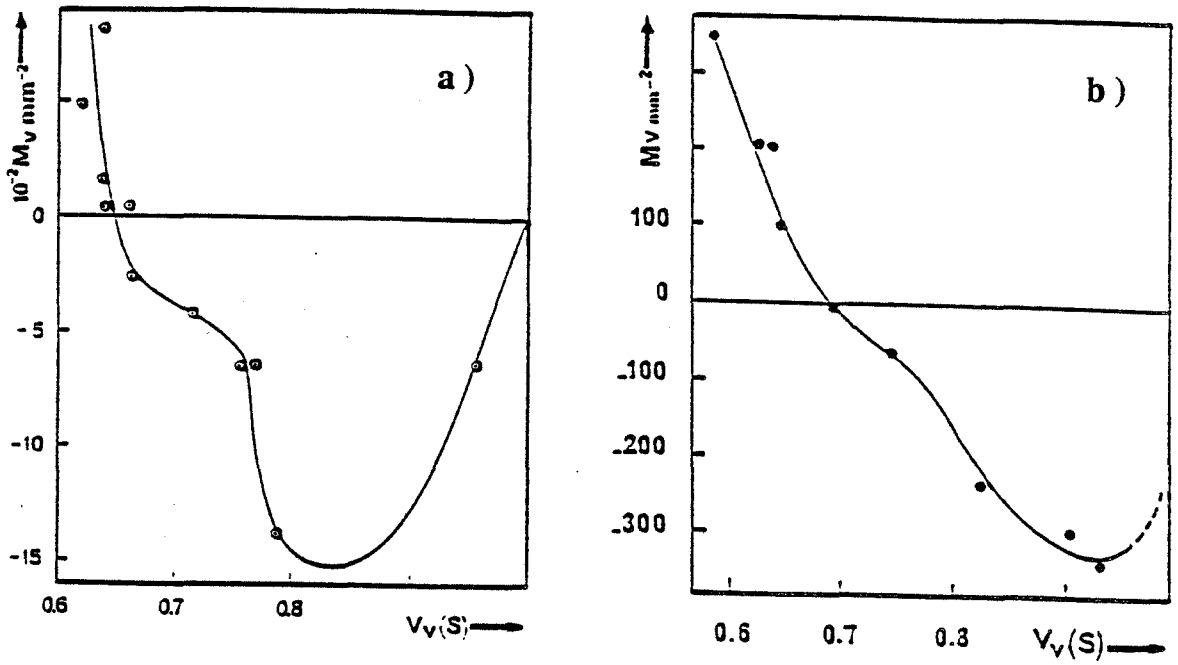


Figure D.III.8. : Intégrale de courbure moyenne par unité de volume, évaluée sur la phase granulaire, en fonction de la compacité des poudres de bronze (a) et de billes de verre (b) frittées (d'après Coronel, p. 43).

IV. Comparaison des deux méthodes de caractérisation

Cette comparaison est réalisée à partir des grandeurs mesurées sur les échantillons de la série I uniquement.

1. La porosité

Puisque $\phi_{Hg} \approx \phi'$ (figure D.II.1.), la variation de ϕ_{AI} en fonction de ϕ_{Hg} est analogue à celle de ϕ_{AI} en fonction de ϕ' représentée sur la figure D.III.1.a.

De ces résultats, nous pouvons conclure que la technique de pesée et la porosimétrie au mercure sont deux méthodes fiables pour mesurer la porosité ouverte. Par contre, les résultats fournis par l'analyse d'image sont très fortement liés à la qualité des images.

2. La taille moyenne des pores

Le diamètre moyen d'entrée des pores $\overline{d}_e$ est beaucoup plus faible que le diamètre moyen $\overline{\delta}$ des pores mesurés sur une section (cf. figure D.IV.1.). Ceci est en partie dû au

principe des deux méthodes utilisées : la première privilégie les petits pores, la seconde donne une mesure directe du diamètre vu sur une section.

Le diamètre moyen $\bar{\delta}$ est lui aussi très inférieur à $\bar{l}$. Le calcul de $\bar{l}$ ne nécessite aucune hypothèse alors que celui de $\bar{\delta}$ suppose des pores cylindriques. Cette dernière hypothèse est d'autant moins vérifiée que la porosité est élevée : en effet, pour des porosités devenant plus faibles, les pores ont tendance à s'arrondir. Ceci permet d'expliquer le fait que l'écart entre $\bar{\delta}$ et $\bar{l}$ est plus important pour les fortes porosités que pour les faibles.

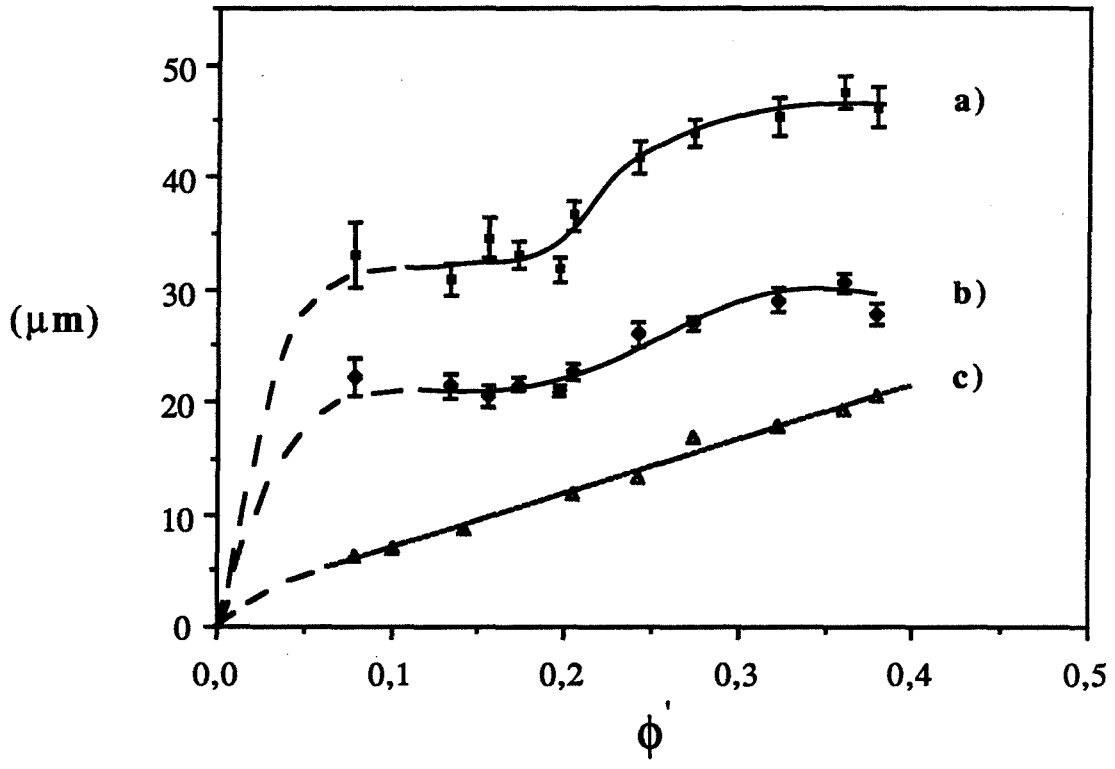


Figure D.IV.1. : Variation, en fonction de la porosité ϕ', de l'intercept moyen $\bar{l}$ (a), du diamètre moyen $\bar{\delta}$ du disque inclus (b) et du diamètre moyen d'entrée des pores $\bar{d}_e = 2\bar{r}_e$ (c) caractérisant l'espace poreux des échantillons de la série I.

3. La surface volumique S'_V

Les valeurs de S'_V obtenues par analyse d'image sont totalement différentes de celles déduites des mesures de porosimétrie au mercure (cf. figure D.IV.2.). Ces dernières supposant des pores cylindriques, nous ne prendrons en compte que celles obtenues par analyse d'image qui résultent d'une mesure directe.

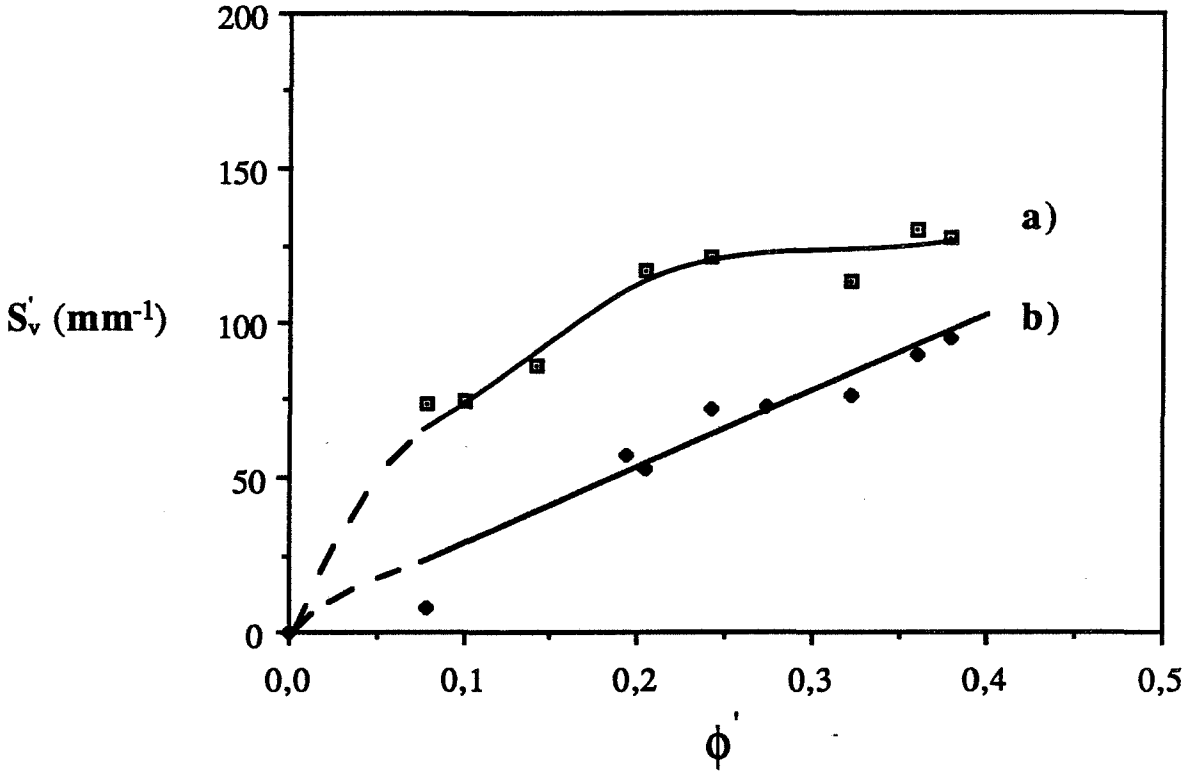


Figure D.IV.2. : Variation, en fonction de la porosité ϕ', de la surface volumique $S_V^{'}$ obtenue par porosimétrie au mercure (a), avec l'hypothèse des pores cylindriques et par A.I. (b).

V. Conclusion

La porosimétrie au mercure est une méthode de caractérisation moins riche (mais tout aussi pertinente) que l'analyse d'image : elle ne nous renseigne en effet que sur la texture de l'espace poreux alors que l'analyse d'image permet en plus une analyse de l'interface phase poreuse - phase granulaire.

Que déduire de ces différentes caractérisations ? Pour répondre à cette question, rappelons les principaux résultats obtenus à partir de chacune des méthodes.

L'analyse des distributions de taille de pores obtenues par porosimétrie au mercure sur les échantillons de la série I montre que toute se passe comme si l'empilement consolidé résultait d'un rapprochement isotrope des particules de l'empilement non consolidé.

La caractérisation par analyse d'image effectuée sur les échantillons des séries I ($50 < D_{p1} < 62$ µm) et II ($290 < D_{p2} < 320$ µm) indique que l'évolution, en fonction de la porosité, des grandeurs caractérisant l'interface phase poreuse - phase granulaire est analogue d'une série à l'autre. Ainsi, quelle que soit la série étudiée :

- la surface volumique du solide S_V décroît, expérimentalement, de façon quasi-linéaire (de $3/R_p$ à 0) lorsque la porosité passe de 0,40 à 0. Un modèle géométrique du frittage a été proposé pour interpréter ce résultat ;

- l'espace poreux, concave pour de fortes porosités (de l'ordre de 0,40) devient convexe à partir de porosités inférieures à 0,30 ;

- les empilements de faible porosité (inférieure à 0,05) semblent présenter des cavités poreuses ayant une taille limite non nulle.

Par contre, l'évolution des tailles de pores (obtenues par ouverture linéaire ou bidimensionnelle) diffère d'une série à l'autre. Les échantillons de la série II voient leur taille de pores ($\bar{\delta}$ et $\bar{l}$) diminuer linéairement au fur et à mesure que la porosité décroît. Aucun échantillon de très faible porosité (< 0,05) n'ayant été analysé dans cette série, l'existence, dans ce domaine de porosité, de cavités poreuses de "taille limite" n'a pu être ni confirmée, ni démentie.

Les échantillons de la série I ont une taille de pores qui reste constante pour des valeurs de la porosité variant de 0,40 à 0,35 puis diminue pour atteindre ensuite une valeur limite à partir d'une porosité inférieure à 0,20. Ce résultat confirme l'existence (présentie) de cavités poreuses de taille limite à l'intérieur des empilements de faible porosité. Une comparaison des résultats obtenus par analyse d'image et par porosimétrie au mercure sur les échantillons de cette série illustre l'importance de la qualité des images.

L'analyse de nos résultats et de ceux répertoriés dans la littérature nous amène à penser que l'évolution, en fonction de la porosité, des grandeurs caractérisant l'interface phase poreuse - phase granulaire est caractéristique de la forme et de la nature du matériau utilisé alors que l'évolution des tailles de pores, en fonction de la porosité, est nettement influencée par la géométrie de l'empilement initial. Ces hypothèses méritent bien entendu, avant de pouvoir être admises, d'être étayées par de nombreuses études expérimentales : frittage de poudres métalliques sphériques et fibreuses.

Disposant de nombreuses grandeurs caractérisant la texture poreuse des échantillons, nous pouvons maintenant étudier l'influence de la géométrie de l'espace poreux de tels milieux sur les propriétés d'une part, de conductivité électrique et d'autre part, d'écoulement d'un liquide.

3EME PARTIE :

CARACTERISATION DE QUELQUES PROPRIETES DE TRANSPORT A TRAVERS DES MILIEUX POREUX CONSOLIDES

E. LA CONDUCTIVITE ELECTRIQUE

Cette étude a pour but d'évaluer la tortuosité des empilements consolidés à partir de mesures électriques. Elle a été réalisée par O. Verhaeghe dans le cadre d'un travail de D.E.A. ; nous n'en rappellerons ici que les grandes lignes.

I. Mode opératoire

1. Principe

Nous devons tout d'abord mesurer le facteur de formation F caractérisant la conductivité d'un électrolyte baignant le milieu poreux considéré. Connaissant la porosité de ce dernier (pour nos calculs, nous avons privilégié ϕ'), nous obtenons aisément la tortuosité T à l'aide de l'équation (A.III.5.).

Par définition, F est égal au rapport des résistivités du milieu poreux saturé en électrolyte Γ_m et de l'électrolyte seul Γ_0. En supposant le milieu poreux saturé contenu dans un cylindre de diamètre D, de hauteur H, de volume V et de section S, sa résistance électrique R est telle que :

$$R = \Gamma_m \frac{H}{S} \qquad \text{(E.I.1.)}$$

Si ce même cylindre est rempli, non plus par le milieu poreux saturé d'électrolyte, mais par l'électrolyte seul, ce dernier offre une résistance électrique R_0 telle que :

$$R_0 = \Gamma_0 \frac{H}{S} \qquad \text{(E.I.2.)}$$

Dans ces conditions, nous obtenons :

$$F = \frac{R}{R_0} \qquad \text{(E.I.3.)}$$

L'évaluation de F nécessite dans les faits la mesure de deux résistances.

2. Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental retenu pour cette étude a nécessité la mise au point de trois éléments (Figure E.I.1.).

La cellule :

Elle est composée d'un tuyau de même diamètre intérieur que les échantillons poreux, permettant à la fois le passage d'un fluide et l'installation de deux électrodes (de platine) à chaque extrémité du tuyau.

Le circuit hydraulique :

Il s'agit d'un circuit ouvert composé des mêmes éléments que celui présenté par la suite (cf. § F.I.).

Le circuit électrique :

Il est composé de deux résistances disposées en série : la première R_1 est connue (R_1 = 10 Ω) ; sa valeur est nettement inférieure à la seconde. Celle-ci est la résistance électrique offerte par ce qui est placé entre les électrodes : soit le composite milieu poreux-électrolyte, soit l'électrolyte seul.

Elle est évaluée en appliquant aux bornes de ces deux résistances une tension alternative U_0 connue (fréquence : 10 kHz - valeur efficace : 100 mV) et en mesurant la tension U_1 aux bornes de la première résistance ; dans ces conditions, nous avons :

$$R = \frac{R_1 \cdot U_0}{U_1} \qquad \text{(E.I.4.)}$$

La valeur minimale de R est de l'ordre de 700 Ω et correspond à une tension U_1 légèrement supérieure à 1 millivolt.

L'ensemble du dispositif a été automatisé.

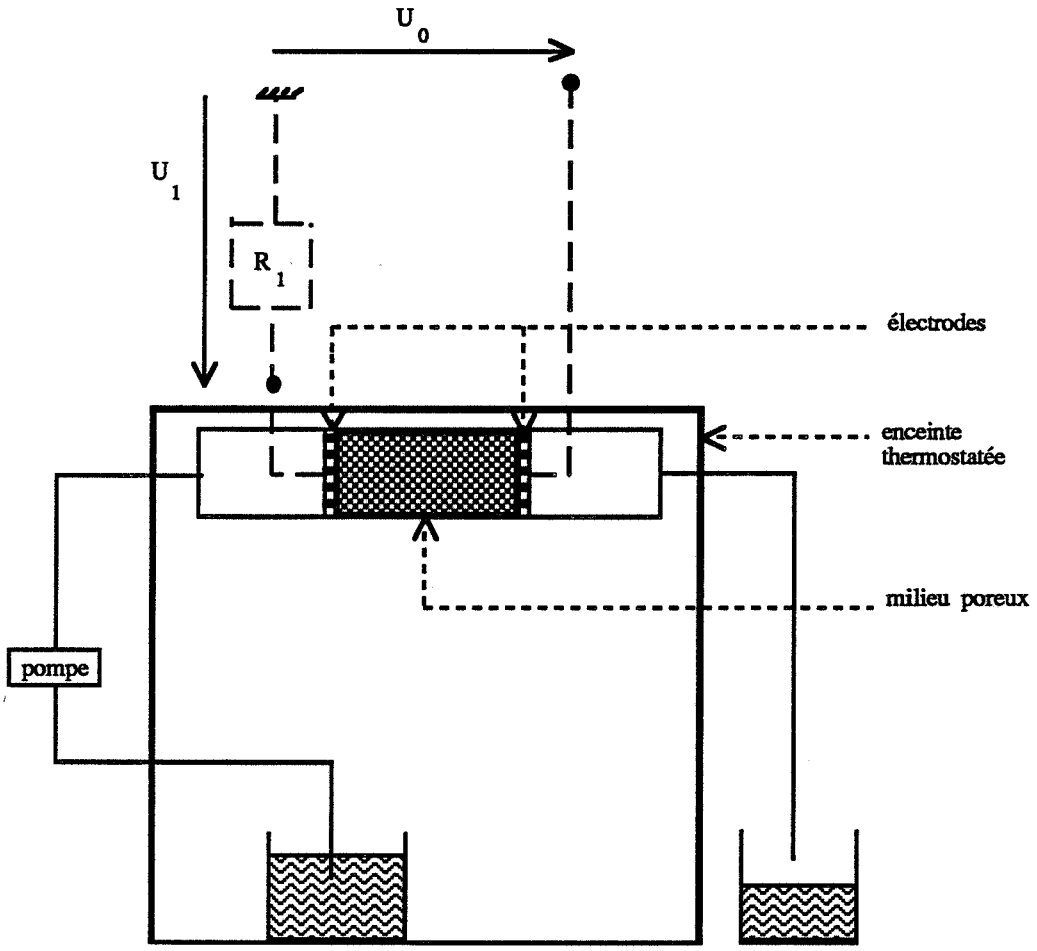


Figure E.I.1. : Schéma du dispositif expérimental de mesure du facteur de formation.

3. Conditions expérimentales

Dans tous les cas, la caractérisation des propriétés de conductivité électrique a lieu après celle des propriétés d'écoulement. Les paramètres retenus concernent le milieu poreux (diamètre des billes, porosité globale) mais aussi le fluide conducteur.

Les échantillons analysés sont ceux décrits précédemment (§ B.II.2.).

Notons cependant que la cellule, telle qu'elle était conçue, ne pouvait permettre la caractérisation des empilements de la série I de porosité inférieure à 0,20.

Différents électrolytes ont été utilisés : il s'agit de solutions aqueuses de KCl, NaCl et $BaCl_2$ de concentration égale à 10^{-2} mole/l pour les deux premières et à 5.10^{-3} mole/l pour la dernière.

La mesure de la tension U_1 est réalisée en statique (la circulation du fluide doit être arrêtée après avoir permis de remplir totalement la cellule en électrolyte). Un temps de stabilisation de 15 minutes est nécessaire avant d'effectuer la mesure. La température (thermorégulée) choisie est de 35°C.

II. Variations du facteur de formation

Nous allons rappelé brièvement l'influence, sur le facteur de formation donc sur la tortuosité T, des différents paramètres retenus pour cette étude.

1. Influence de la nature de l'électrolyte

Quelles que soient la série d'échantillons analysée et la porosité de l'empilement considéré, le facteur de formation F (donc la tortuosité T) est indépendant de l'électrolyte utilisé. Ce résultat, conforme à ce qui a été dit précédemment (§ A.III.2.b.), est partiellement illustré par la figure E.II.1.

2. Influence de la taille des billes de verre

Quels que soient l'électrolyte et la porosité des échantillons, le facteur de formation est indépendant de la taille des billes utilisées pour réaliser les empilements. Ce résultat est partiellement illustré par la figure E.II.2.

3. Influence de la porosité

Quels que soient l'électrolyte et le diamètre des billes utilisées pour réaliser les échantillons consolidés, la loi d'Archie est vérifiée pour des porosités comprises entre 0,20 et 0,40 (Figure E.II.3.). Pour des porosités inférieures à 0,20, les valeurs expérimentales du facteur de formation sont supérieures à celles prévues par la loi d'Archie et ce d'autant plus que la porosité diminue. Aux erreurs expérimentales près, la loi d'Archie, lorsqu'elle est vérifiée, est de la forme :

$$F = \phi^{-m}$$

avec m = 1,50.

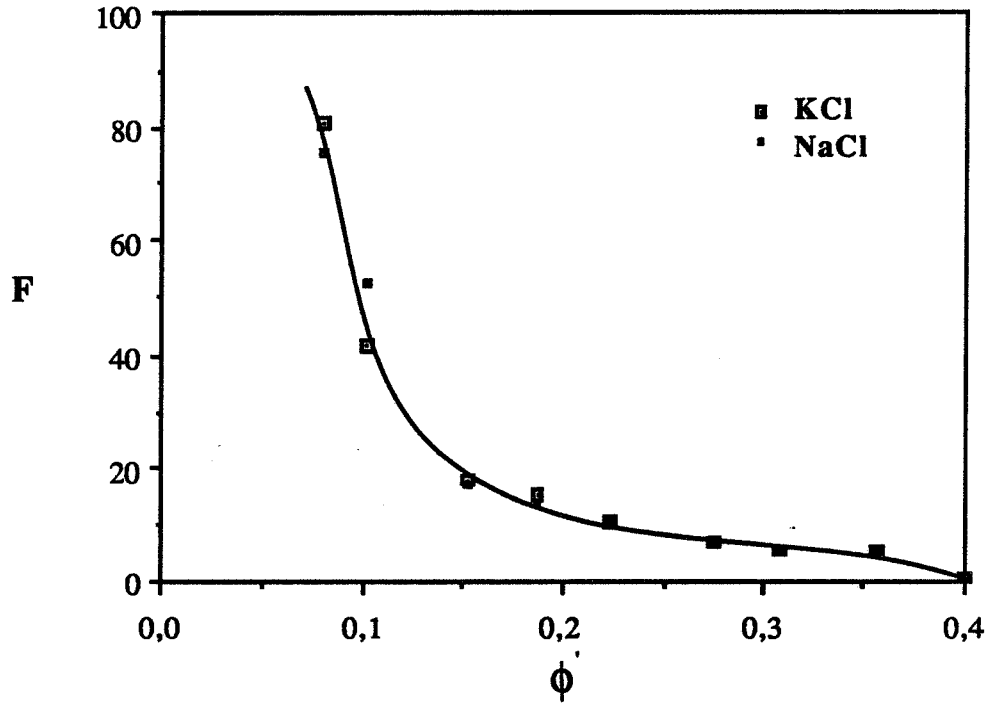


Figure E.II.1. : Influence de la nature de l'électrolyte sur le facteur de formation des échantillons de la série II de porosité ϕ' ($290 < D_{p_2} < 320$ µm).

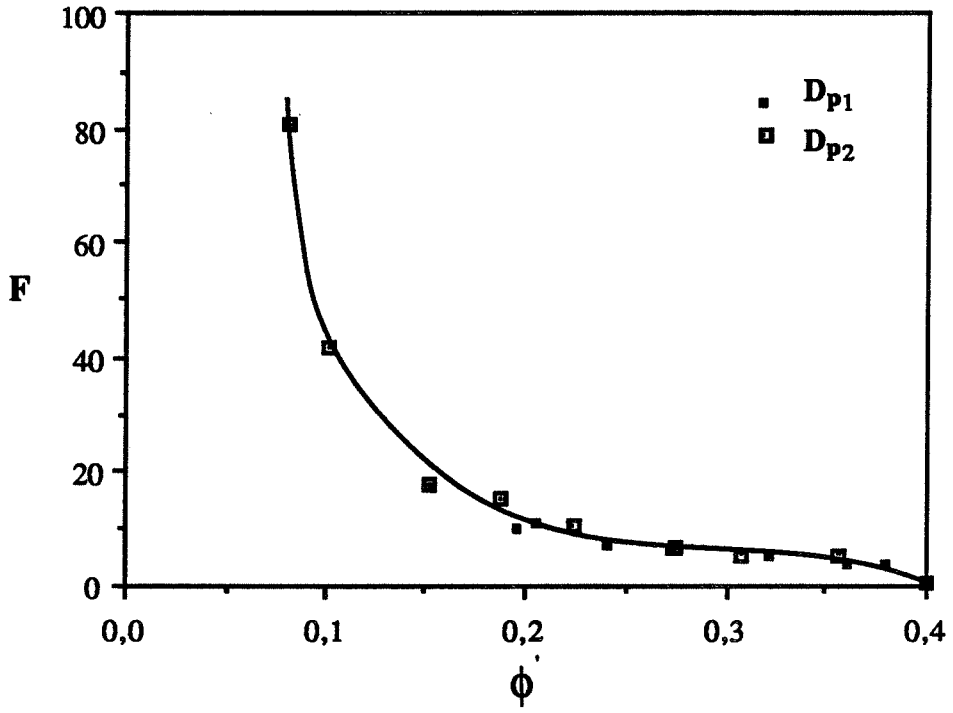


Figure E.II.2. : Influence de la taille des billes de verre utilisées pour réaliser les échantillons sur les valeurs du facteur de formation obtenues avec la solution de KCl.

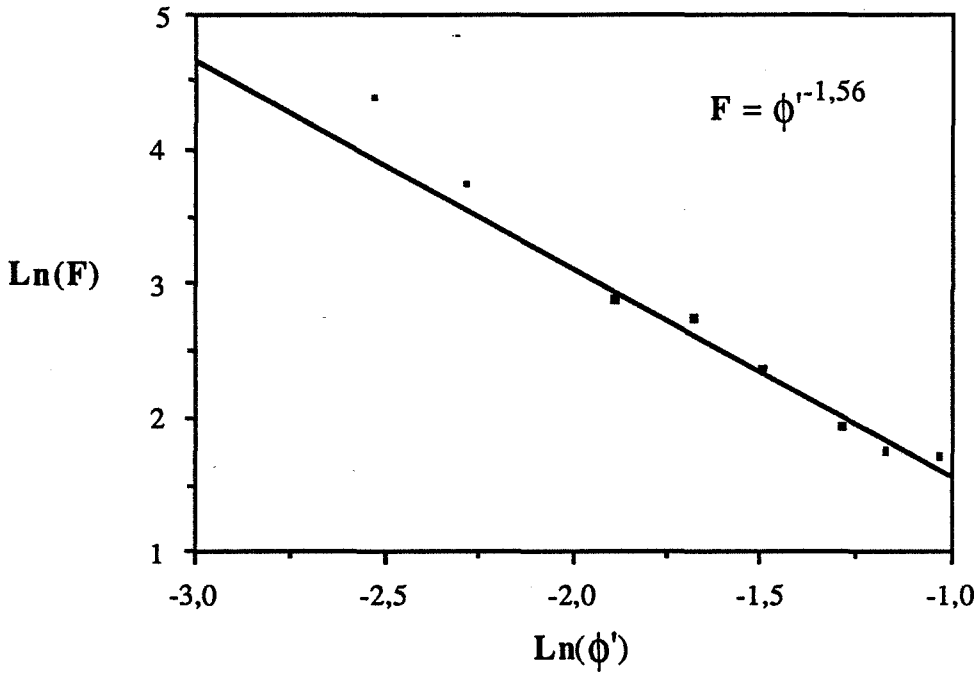


Figure E.II.3. : Validité de la loi d'Archie vérifiée dans le cas des échantillons de la série II (D_{p_2}) de porosité supérieure à 0,20 (ln ϕ' > -2) avec la solution de KCl. L'équation de la droite qui conduit à $F = \phi^{-1,56}$ a été obtenue sans tenir compte des points tels que $\phi' < 0,20$.

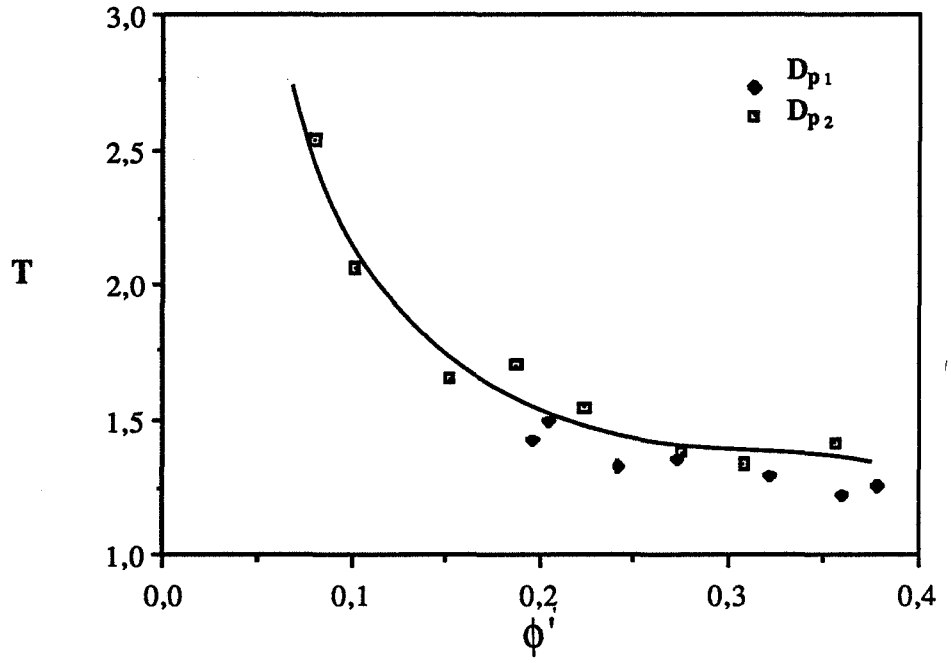


Figure E.II.4. : Variation, en fonction de la porosité ϕ', de la tortuosité T déduite des mesures de conductivité électrique effectuées avec la solution du KCl.

Nous vérifions bien dans ces conditions que le coefficient de cimentation m d'une part est indépendant de la taille des particules et d'autre part prend une valeur compatible avec les données de la littérature (cf. § A.III.2.b.).

4. La tortuosité T

Moyennant certaines hypothèses concernant la géométrie de l'espace poreux (cf. annexe 1), cette étude nous permet également d'évaluer le facteur de tortuosité T susceptible d'intervenir lors de la caractérisation des propriétés d'écoulement effectuée sur ces mêmes milieux et présentée dans la prochaine partie de cet exposé.

Dans ce qui suit, les valeurs de T utilisées pour différents calculs sont, sauf avis contraire, celles déduites de l'équation ($F = T^2/\phi'$) (établie en annexe 1) où F est le facteur de formation mesuré en prenant pour électrolyte la solution de KCl.

La figure E.II.4. montre que la tortuosité croît légèrement (de 1,25 à 1,50) lorsque la porosité passe de 0,40 à 0,20 puis brutalement lorsque la porosité décroît de 0,20 à 0,08.

F. L'ECOULEMENT D'UN LIQUIDE

Cette étude a pour but de caractériser les propriétés d'écoulement, supposé unidirectionnel, d'un liquide à travers un milieu poreux consolidé "modèle", c'est-à-dire de relier la chute de pression ΔP observée entre les deux extrémités du milieu à la vitesse du liquide u_0 après traversée du milieu, à l'aide de certains paramètres caractéristiques du milieu poreux, ou du liquide.

Pour ce faire, nous devons tout d'abord nous donner les moyens de mesurer, pour un échantillon donné, ΔP et u_0.

De l'analyse des courbes de variation de ΔP en fonction de u_0, nous définirons d'une part le régime d'écoulement rencontré puis les grandeurs pertinentes susceptibles de conduire à une relation simple entre ΔP et u_0. Cette analyse sera réalisée à l'aide des données de la littérature présentées au paragraphe A.II.

I. Principe de mesures

1. Dispositif expérimental

Il doit permettre de mesurer u_0 et la chute de pression ΔP, différence entre la pression à l'entrée P_e et à la sortie P_s du milieu.

a. Principe

Nous avons retenu la solution (cf. figure F.I.1.) qui consistait à faire circuler le fluide à travers le milieu poreux à l'aide d'une pompe à engrenage (IWAKI-MDG M25 220).

Un régulateur de débit (non représenté sur la figure) s'intercale entre la pompe et la vanne. Cette dernière permet de faire varier le débit du liquide et, par la même occasion, la pression P_e. Le capteur de pression (à membrane) placé en dérivation, mesure la pression P_m (à 1 kPa près) en un point situé à une distance H_1, fixée, de la base de l'échantillon. Ce dernier étant positionné verticalement, nous avons $P_m = P_e + \rho g H_1$ (g est ici l'accélération de la pesanteur).

Juste avant de s'écouler dans le récipient placé sur la balance, (METTLER PE 3600, précision de 10^{-2} g), le liquide est soumis à la pression atmosphérique P_a. Ceci se produit en un point situé à une distance H_2 (variable d'un échantillon à l'autre mais qui est mesurée) de l'extrémité supérieure de l'échantillon. Ainsi : $P_s = P_a + \rho g H_2$.

Dans ces conditions, la mesure de ΔP ($\Delta P = |P_s - P_e|$) est possible : elle n'est pas directe.

La vitesse u_0 du fluide est, quant à elle, déduite d'une mesure de débit rendue possible en suivant, en fonction du temps et pour une pression P_e fixée, la variation de la masse indiquée par la balance. Connaissant le diamètre D du tuyau dans lequel est placé l'échantillon et la masse volumique du fluide, il est facile d'obtenir la vitesse u_0.

Pour des raisons présentées ultérieurement, il a fallu thermoréguler une partie du montage. La mesure de la température du liquide est réalisée à l'aide d'un thermocouple (fer - constantan).

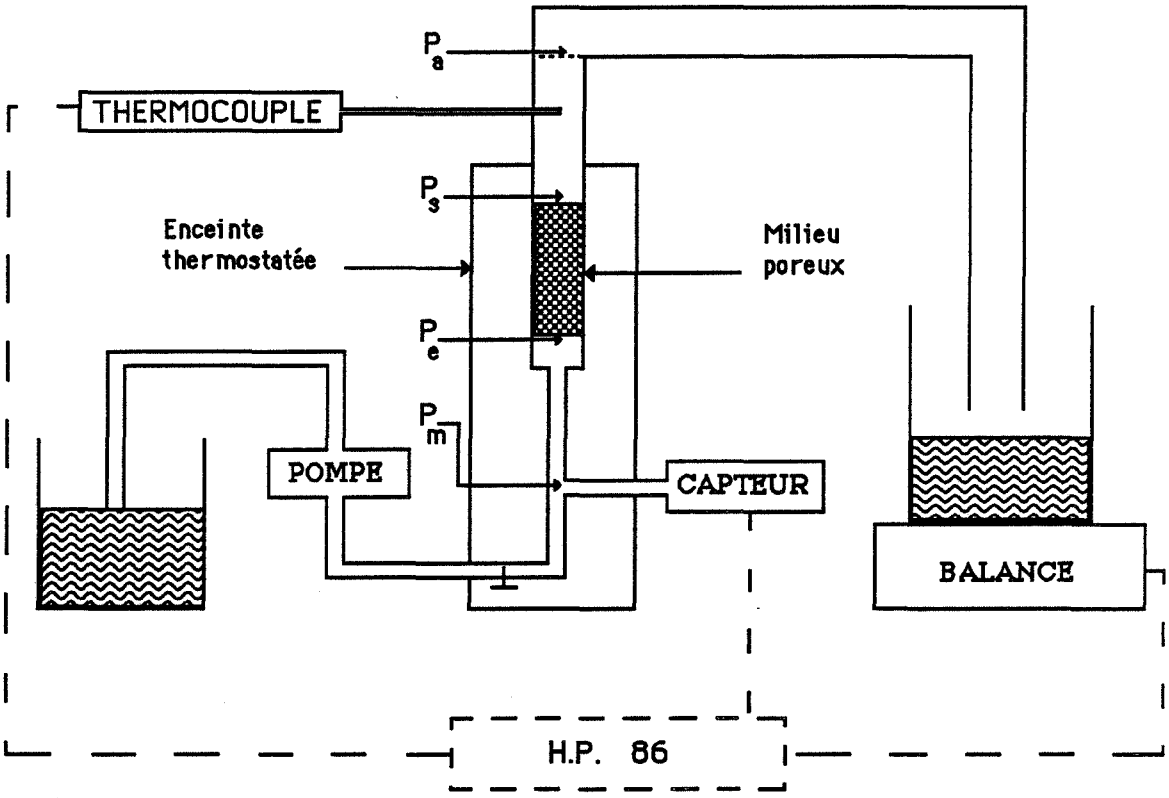


Figure F.I.1. : Schéma du montage utilisé pour caractériser les propriétés d'écoulement des milieux poreux consolidés.

b. Mise en place des échantillons

Chaque échantillon est glissé à l'intérieur d'un tube en silicone (de diamètres interne 16 mm et externe 21 mm). Pour éviter tout passage de liquide entre les parois du tuyau et l'échantillon, celui-ci a été, au préalable, recouvert d'une pâte silicone qui assure l'étanchéité sans pour autant pénétrer à l'intérieur du milieu poreux. Le tout est aussitôt glissé à l'intérieur d'un cylindre évidé en PVC (hauteur : 80 mm - diamètre interne : 21 mm - diamètre externe : 50 mm) pour permettre le séchage dans de bonnes conditions, de la pâte silicone. Un raccord rapide disposé à l'une des extrémités du tuyau est partiellement emboîté à l'intérieur du cylindre en PVC, et permet la fixation de l'échantillon sur le circuit hydraulique.

c. Automatisation du montage

Le dispositif utilisé permet une acquisition automatique des valeurs de pression de température et de masse à un instant t déterminé par l'horloge de l'ordinateur. Le convertisseur analogique-numérique relié au capteur de pression est intégré à un multimètre KEITHLEY. Le thermocouple est relié à un multimètre HP 3421 A.

2. Protocole opératoire

Concrètement l'analyse des propriétés d'écoulement d'un échantillon s'effectue après saturation de l'échantillon par ouverture complète de la vanne. Après avoir été complètement fermée, la vanne est partiellement ouverte, imposant ainsi une pression P_{m_1}. Lorsque celle-ci est

stabilisée, la mesure de P_{m_1}, de la température et de la masse est réalisée dans les conditions indiquées au paragraphe suivant. La vanne est ensuite ouverte davantage mais toujours partiellement imposant une pression P_{m_2} et ainsi de suite jusqu'à ce que la vanne soit totalement ouverte.

Les grandeurs nécessaires au calcul de ΔP, à savoir H_2 et P_a, sont alors mesurées : la pression atmosphérique P_a est obtenue à l'aide du capteur installé sur le montage.

a. Acquisition des données

Pour une position fixée de la vanne, lorsque l'écoulement est stationnaire, l'ordinateur enregistre, à dix reprises, une série de valeurs : la pression P_{m_i}, la température $\mathcal{T}_i$, la masse m_i affichée par la balance et la date t_i à laquelle toutes ces mesures sont effectuées.

Afin de s'assurer de la stabilité de la pression P_m d'une part et minimiser les erreurs de mesures du débit d'autre part, et ce quel que soit le débit mesuré, certaines précautions sont à prendre quant au choix de la durée Δt qui sépare deux séries de mesures. Pour de faibles débits, Δt est telle que la variation de masse observée entre deux enregistrements consécutifs soit supérieure à 5 g. Dans ces conditions, l'acquisition des dix séries de mesures nécessite "naturellement" une durée suffisamment importante pour pouvoir vérifier la stabilité de la pression P_m. Pour des débits importants, Δt est choisi de telle sorte que l'acquisition des dix séries de mesures nécessite au moins deux minutes : la variation de masse entre deux séries de mesure est alors assez élevée pour minimiser les éventuelles erreurs faites sur la mesure du débit.

b. Traitement des données

Pour un échantillon donné, les valeurs moyennes de la pression P_{m_j}, de la température $\mathcal{T}_j$ et du débit Q_j, correspondant à une position déterminée de la vanne, sont calculées à partir des dix séries de mesures explicitées précédemment. Le débit moyen Q_j a été évalué en faisant la moyenne arithmétique des débits Q_i (i variant de 2 à 10). La pression P_{m_j} est évaluée, dans ces conditions, à 0,5 % près.

3. Conditions expérimentales

Les paramètres retenus pour cette étude concernent les empilements (porosité - taille des particules) et le fluide (viscosité - masse volumique).

Les échantillons analysés sont ceux décrits précédemment (§ B.II.2.).

Notons qu'ici aussi le support des échantillons décrit au paragraphe F.I.1.b. ne permet pas la caractérisation des échantillons de la série I ($50 < D_{p_1} < 62$ µm) qui ont des porosités inférieures à 0,20, même si leur hauteur est réduite à 1 cm.

a. Liquides utilisés

Les liquides utilisés sont l'eau pure et une solution aqueuse de glycérol ($C_3H_8O_3$). Cette dernière a été retenue car, selon sa teneur en glycérol, elle permet de faire varier la viscosité η sur un très large domaine (figure F.I.2.) sans pour autant modifier de façon notable la masse volumique ρ.

Sa concentration c a été évaluée en mesurant la masse volumique ρ du mélange glycérol-eau et en prenant la teneur correspondante indiquée par les tables (Techniques de l'Ingénieur - 1955 - Vol. K, p. 480-6). Elle est de 34 % (pourcentage massique) ; cette valeur donne lieu à une viscosité nettement différente de celle de l'eau pure sans pour autant conduire à des durées d'acquisition trop longues.

Les caractéristiques des fluides utilisés, sont indiquées dans le tableau F.I.1. Notons que, dans ces conditions, la masse volumique ρ est supposée indépendante de la température (Techniques de l'Ingénieur, 1955, Vol. K, p. 450-7).

c (%)	0	34
ρ (g/cm^3) (20°C)	0,998	1,083
η (cp) (30°C)	0,800	2,167

Tableau F.I.1. : Caractéristiques des solutions aqueuses de glycérol de concentration c utilisées. D'après les "Techniques de l'Ingénieur" (1955 - Vol. K, p. 480-6).

Pour éviter tout problème de bouchage des pores, l'eau utilisée a été au préalable filtrée et distillée. De plus, après chaque passage dans le circuit hydraulique, le liquide, avant tout autre passage, est filtré sur papier (0,6 μm) à l'aide d'une trompe à eau.

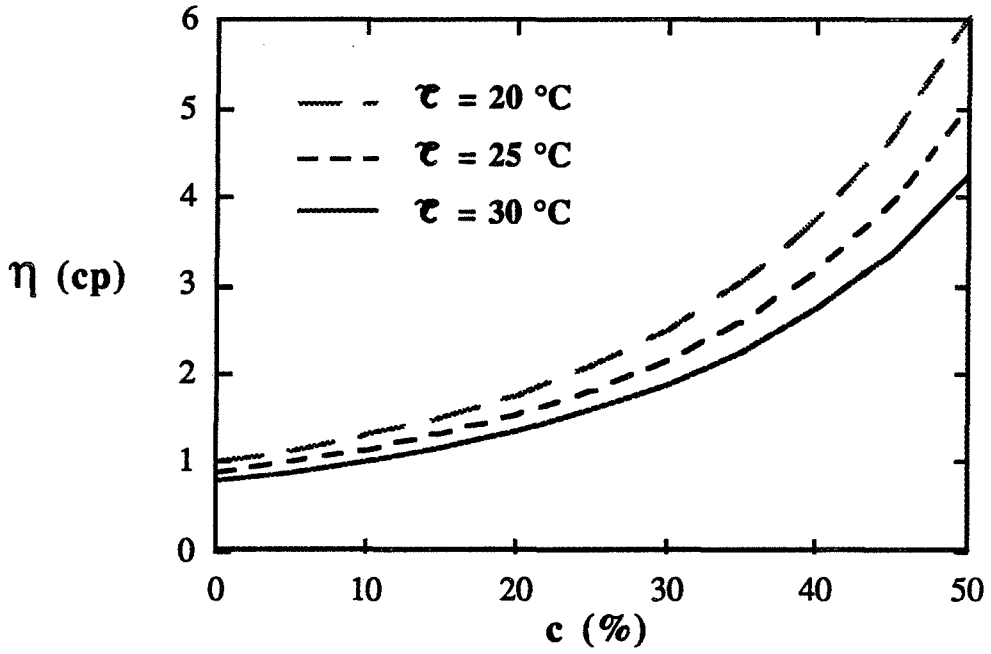


Figure F.I.2. : Variation de la viscosité d'une solution aqueuse de glycérol en fonction de sa concentration c (% massique) à différentes températures. D'après les techniques de l'Ingénieur (1955, Vol. K, p. 480-6).

b. Température

Pour une teneur donnée, la viscosité de la solution aqueuse de glycérol est sensible à la température, d'autant plus si la teneur est élevée (figure F.I.2.). Pour cette raison, nous avons choisi d'effectuer nos mesures à la température $\mathcal{T} = 30 \pm 0{,}5°C$. Ainsi, une partie du montage (indiquée sur la figure F.I.1.) est immergée dans un bain thermostaté.

II. Résultats expérimentaux

1. Présentation des résultats

Les courbes de variation de $\Delta P/H$ en fonction de u_0 représentent une fonction de type soit parabolique, soit linéaire (figures F.II.1. et F.II.2.). La variation est parabolique lorsque la régression linéaire réalisée, selon la méthode des moindres carrés, sur la courbe de variation de $\Delta P/(H \,.\, u_0)$ en fonction de u_0, conduit à un coefficient de corrélation supérieur à 0,99 alors que l'application de cette méthode à la courbe de variation $\Delta P/H$ en fonction de u_0 conduit à un coefficient de corrélation inférieur à 0,99. Dans tous les autres cas, $\Delta P/H$ croît linéairement avec u_0 : la régression linéaire effectuée selon la méthode des moindres carrés, sur les courbes de variation de $\Delta P/H$ en fonction de u_0 conduit à des coefficients de corrélation supérieurs à 0,99 et à des ordonnées à l'origine négligeables devant les erreurs de mesures réalisées sur P_a et H_2.

Ainsi, nous écrirons $\Delta P/H = A\, u_0$ dans le cas d'une variation linéaire et $\Delta P/(H \,.\, u_0) = A + B\, u_0$ dans le cas d'une variation parabolique (figure F.II.3.) : A et B sont obtenus par régression linéaire.

2. Les différents régimes d'écoulement

La variation de $\Delta P/H$ en fonction de u_0 est de type parabolique dans le cas des échantillons poreux ($\phi_{AI} > 0{,}10$) de la série II ($290 < D_{p_2} < 320\ \mu m$) ; elle est linéaire dans tous les autres cas (tableau F.II.1.).

Elle met en évidence deux régimes d'écoulement :

- un écoulement laminaire linéaire lorsque la variation de $\Delta P/H$ en fonction de u_0 est linéaire
- un écoulement laminaire non linéaire lorsque la variation de $\Delta P/H$ en fonction de u_0 est parabolique (cf. § A.I.2.c.).

En utilisant pour grandeur caractéristique du diamètre, dans le nombre de Reynolds, l'intercept moyen $\bar{l}$ déduit des mesures d'analyse d'image (cf. § C.II.2.b.), le nombre de Reynolds ($Re = (\rho/\eta)\, \bar{l}\, u_0$) est tel que :

$0{,}04 < Re < 2$ si l'écoulement est laminaire linéaire
et $2 < Re < 6$ si l'écoulement est laminaire non linéaire.

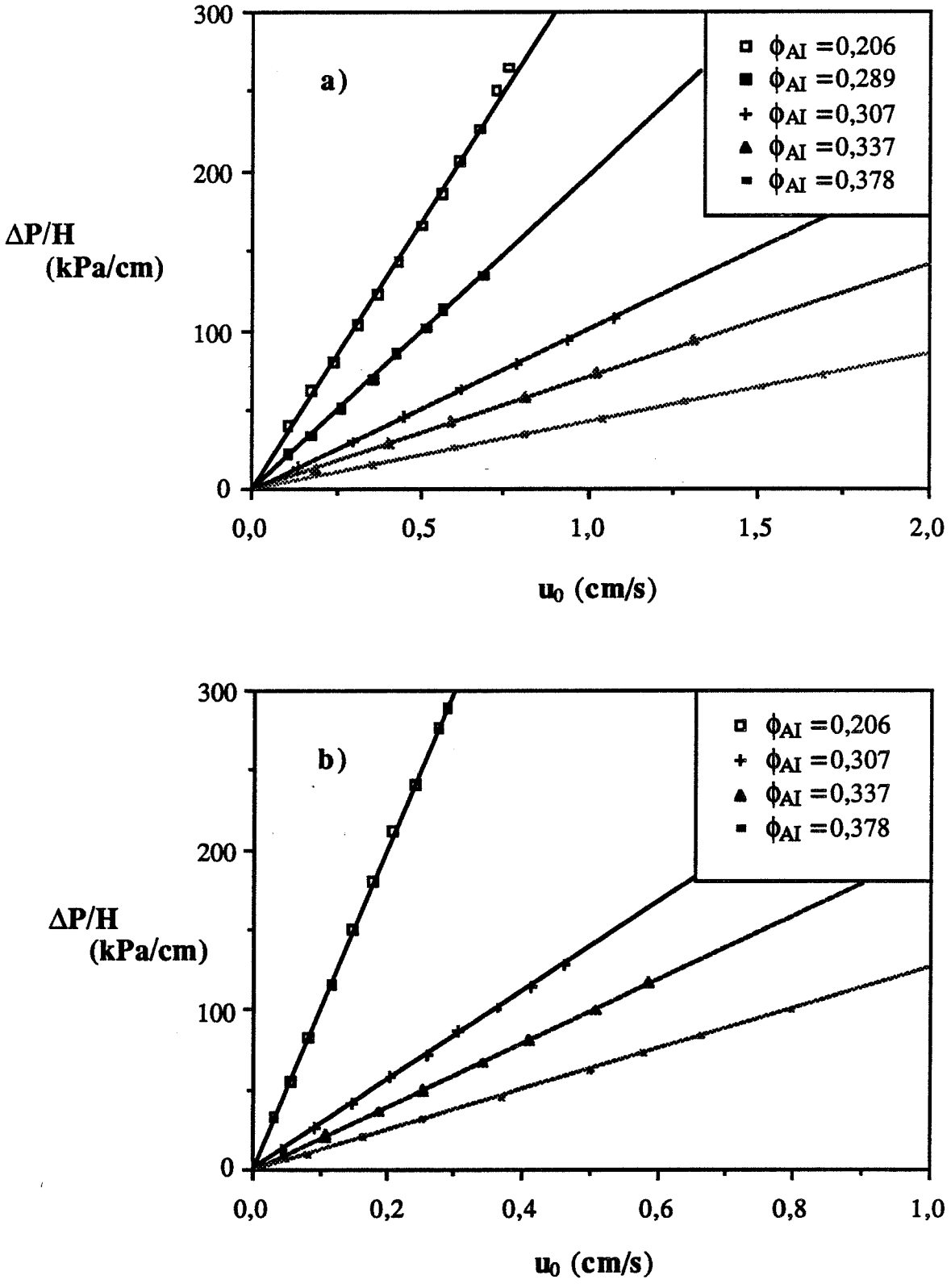


Figure F.II.1. : Variation de ΔP/H en fonction de u_0 dans le cas des empilements de billes de diamètre D_{p_1} = 55 µm traversés par de l'eau pure (a) et une solution aqueuse de glycérol de concentration c = 34 % (b) (pourcentage massique).

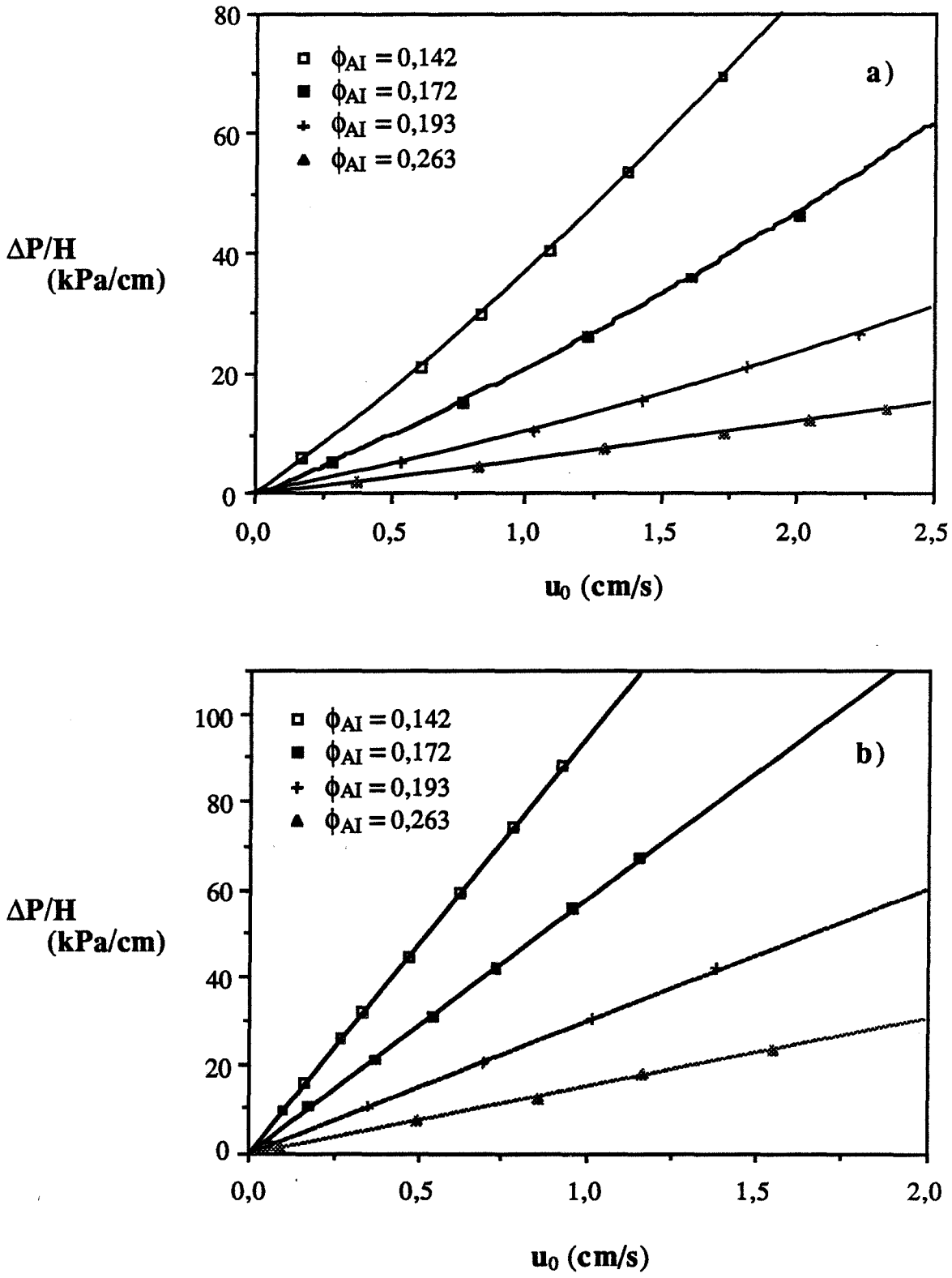


Figure F.II.2. : Variation de ΔP/H en fonction de u_0 dans le cas des empilements frittés de billes de diamètre D_{p_2} = 295 µm traversés par de l'eau pure (a) et une solution aqueuse de glycérol de concentration c = 34 % (b) (pourcentage massique).

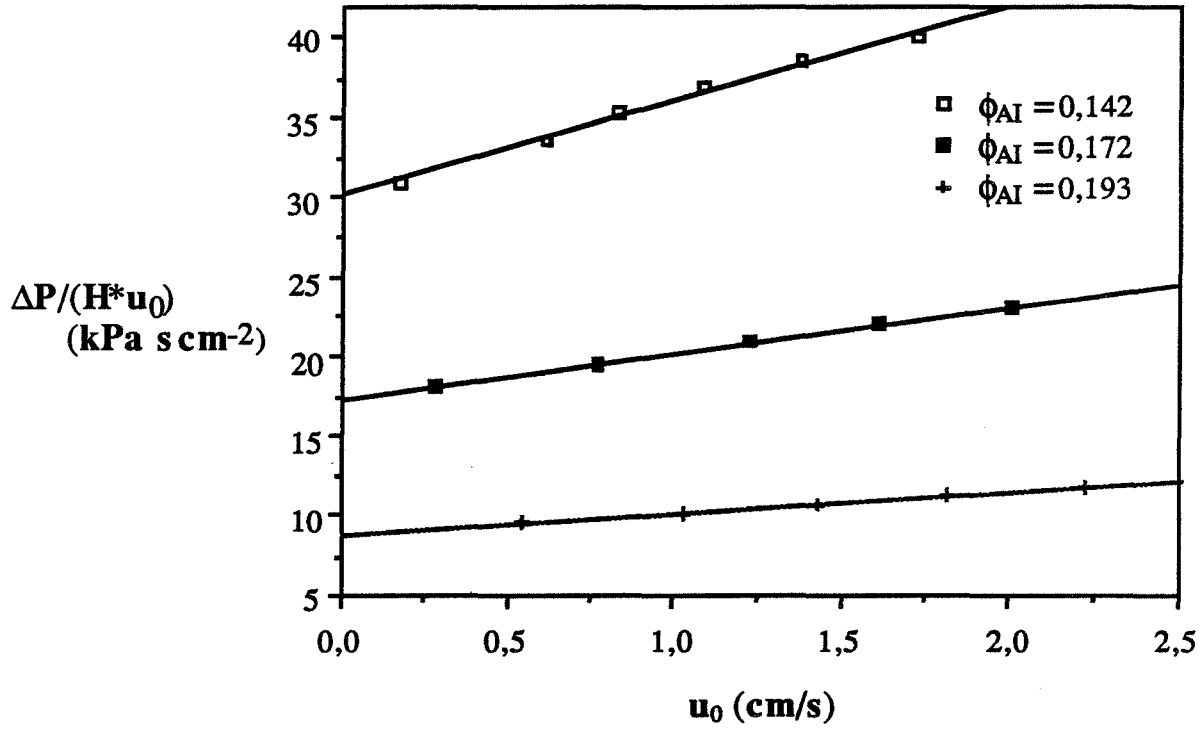


Figure F.II.3. : Variation de $\Delta P/(H\ u_0)$ en fonction de u_0 dans le cas des empilements frittés de billes de diamètre D_{p_2} traversés par de l'eau pure.

En prenant pour grandeur caractéristique du nombre de Reynolds le rayon efficace $R_p = \frac{3}{S_V'}$ (cf. § A.I.2.b.) où S_V' est déduite des mesures d'analyse d'image (cf. § C.II.2.a.), les valeurs du nombre de Reynolds $Re = \frac{2\rho R_p u_0}{\eta}$ sont nettement supérieures à celles obtenues dans le cas précédent. Elles sont telles que :

$0{,}10 < Re < 6$ si l'écoulement est laminaire linéaire
et $6 < Re < 26$ si l'écoulement est laminaire non linéaire.

Dans les deux cas, la valeur de Re_c est en accord avec les résultats de la littérature qui suggèrent que $0{,}1 < Re_c < 75$ (figure A.I.1.).

	c (%) / ϕ_{AI}	0	34
$50 < D_{p_1} < 62\ \mu m$	0,206 0,289 0,307 0,337 0,378	linéaire	linéaire
$290 < D_{p_2} < 320\ \mu m$	0,082 0,093	linéaire	linéaire
	0,142 0,172 0,193 0,263 0,306	parabolique	

Tableau F.II.1. : Domaine d'existence des différents types de variation de $\Delta P/H$ en fonction de u_0.

3. Influence de la nature du liquide

Par la suite, les grandeurs A, ρ, η et a_{vd} seront indicées par "1" ou "2" si elles concernent respectivement l'écoulement de l'eau pure ou de la solution aqueuse à 34 % de glycérol.

D'après le modèle d'Ergun (cf. § A.II.1.), le coefficient A s'écrit comme le produit de deux variables indépendantes, l'une $\mathfrak{K}$ caractérisant la géométrie du milieu poreux, l'autre η caractérise le liquide. Ainsi, pour un échantillon donné, nous pouvons écrire :

$$A_i = \mathfrak{K}\ \eta_i \ (i = 1, 2) \qquad \text{(F.II.1.)}$$

Si les variables $\mathfrak{R}$ et η sont indépendantes, nous devrions donc avoir :

$$A_2 = \frac{\eta_2}{\eta_1} A_1 \qquad \text{(F.II.2.)}$$

Comiti, dans son modèle, exprime $\mathfrak{R}$ sous la forme d'un produit de plusieurs termes :

$$\mathfrak{R} = 2\gamma T^2 a_{vd}^2 \frac{(1-\phi)^2}{\phi^3} \qquad \text{(F.II.3.)}$$

Certains d'entre eux caractérisent la texture poreuse proprement dite (γ, T, ϕ) ; la surface spécifique dynamique a_{vd} caractérise à la fois le solide et le liquide.

Dans ces conditions, nous devrions avoir :

$$A_2 = \left(\frac{a_{vd_2}}{a_{vd_1}}\right)^2 \left(\frac{\eta_2}{\eta_1}\right) A_1 \qquad \text{(F.II.4.)}$$

a. Cas des empilements frittés de billes de diamètre D_{p_1}

Dans le cas des échantillons de la série I, la variation de $\Delta P/H$ en fonction de u_0 est linéaire quel que soit le liquide utilisé (tableau F.II.1.).

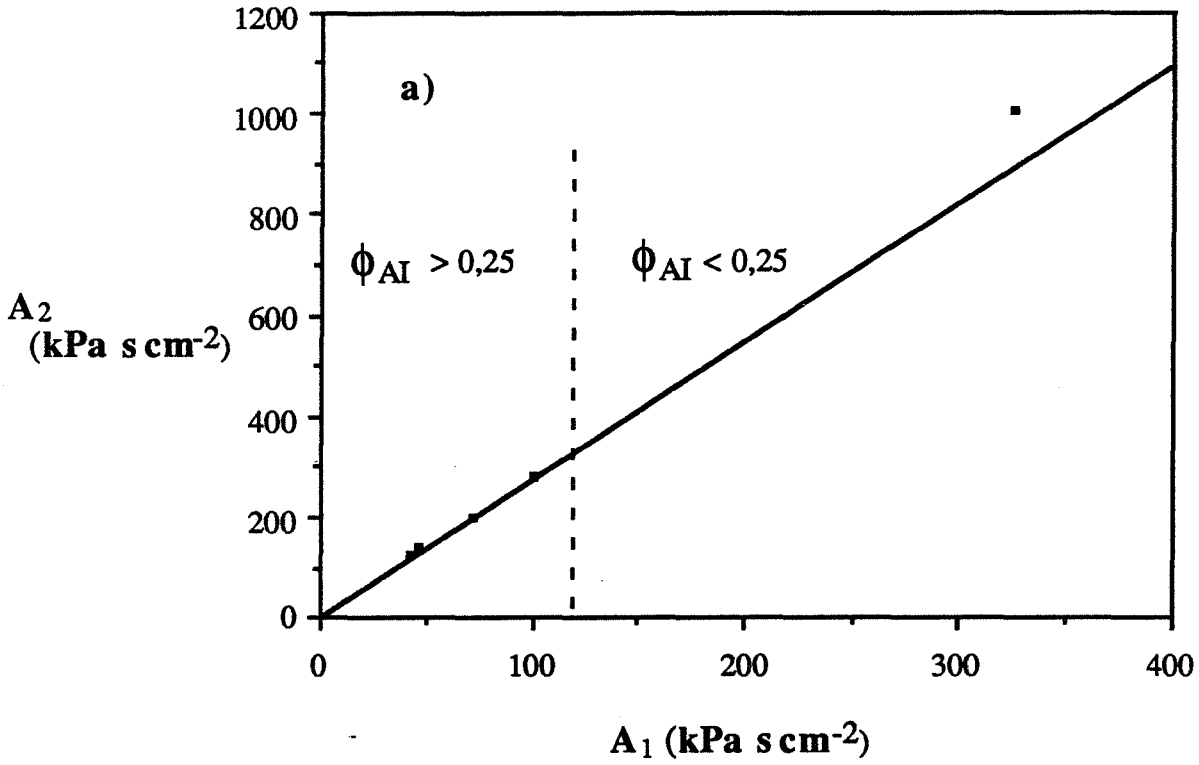
L'équation F.II.2. est parfaitement vérifiée pour des échantillons de porosité supérieure à 0,25 ($0,25 < \phi_{AI} < 0,40$) ; elle est mise à défaut pour des porosités inférieures (figure F.II.4.a.).

b. Cas des empilements frittés de billes de diamètre D_{p_2}

Dans le cas des échantillons de la série II, la variation de $\Delta P/H$ en fonction de u_0 peut passer de parabolique à linéaire par changement de liquide (tableau F.II.1.).

L'équation F.II.2. est ici aussi bien vérifiée pour des échantillons de porosité supérieure à 0,25 ($0,25 < \phi_{AI} < 0,40$) ; elle est mise à défaut pour des échantillons de porosité inférieure à 0,25.

Les valeurs de A_1 étant très faibles (inférieures à 10 kPa s.cm^{-2}) pour des échantillons de porosité supérieure à 0,25, un écart sensible à la courbe théorique reste acceptable dans ce domaine de porosité. Par contre, un écart de 20 ou 30 % à la courbe théorique ne peut être totalement attribué aux erreurs de mesure dans le cas où les valeurs de A_1 et A_2 sont importantes (échantillons de porosité inférieure à 0,25).



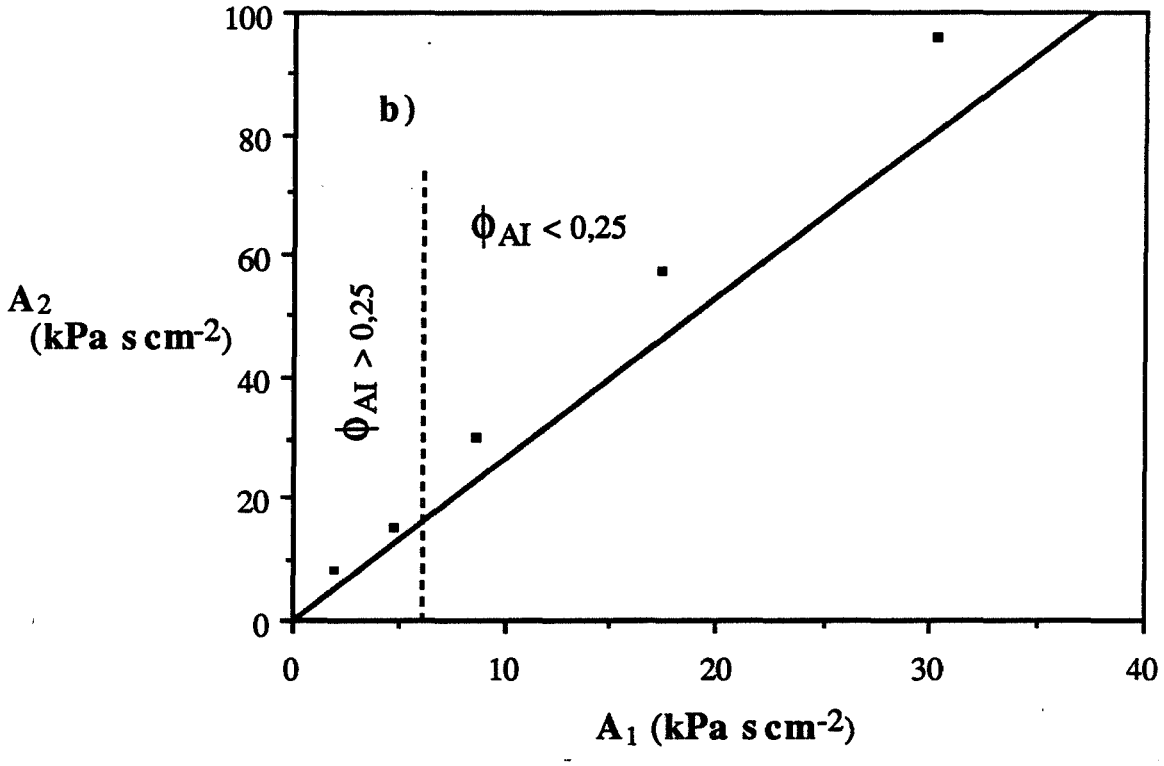


Figure F.II.4. : Variation de A_2 en fonction de A_1 dans le cas des empilements frittés de billes de diamètre D_{p_1} (a) et D_{p_2} (b) de porosité comprise entre 0,20 (a) ou 0,15 (b) et 0,40.

Remarque : Pour minimiser les erreurs de mesure réalisées sur les échantillons de forte porosité, nous aurions pu utiliser des échantillons plus hauts (3 ou 4 cm). Mais ils auraient présenté un gradient de porosité important le long de l'axe cylindrique (cf. § B.I.2.).

c. Conclusion

Ces résultats montrent que le modèle d'Ergun n'est, a priori, transposable aux milieux poreux consolidés que dans un domaine restreint de porosité ($0,25 < \phi < 0,40$).

Le modèle de Comiti n'est en aucun cas mis en défaut : il montre que, quelle que soit la série étudiée, la surface spécifique dynamique est identique d'un liquide à l'autre ($a_{vd_1} = a_{vd_2}$) pour des échantillons de porosité supérieure à 0,25. Par contre, le coefficient A_2 mesuré, étant toujours supérieur à sa valeur théorique dans le cas des échantillons de porosité inférieure à 0,25, nous avons la relation :

$$a_{vd_2} > a_{vd_1} \qquad \text{(F.II.5.)}$$

Des mesures réalisées par le laboratoire "Energétique et réactivité aux interfaces" de l'Université Pierre et Marie Curie (Paris) ont montré que la tension superficielle de la solution aqueuse de glycérol à 34 % était inférieure à celle de l'eau pure (66,7 mN/m et 71,5 mN/m) alors que les angles de mouillage liquide-verre sont sensiblement identiques (de l'ordre de 32°). Ces résultats, bien qu'insuffisants, laissent supposer que la solution aqueuse de glycérol est plus "mouillante" que l'eau pure et ne contredisent donc pas la relation F.II.5.

4. Comparaison de nos résultats à ceux proposés par la littérature

Nous nous proposons, dans ce paragraphe, de vérifier la validité de certains modèles d'écoulement (Ergun et Comiti), établis pour des milieux poreux non consolidés.

a. Le modèle d'Ergun

Nous avons vu précédemment qu'il n'était, a priori, adapté qu'aux milieux consolidés de porosité supérieure à 0,25. L'expression de ce modèle (cf. § A.II.1. - Equation A.II.4.), fait intervenir deux facteurs correctifs α et β tels que $\alpha = 2,083$ et $\beta = 2,133$.

A partir des mesures de S'_V et de ϕ faites par analyse d'image et des coefficients A_i et B_i déduits des propriétés d'écoulement, nous avons évalué α et β :

$$\alpha = \frac{A_i \phi_{AI}^3}{2\left(1 - \phi_{AI}\right)^2 S'^2_V \eta_i} \qquad \text{(F.II.6.)}$$

$$\beta = \frac{8 B_i \phi_{AI}^3}{(1 - \phi_{AI}) S'_V \rho_i} \qquad \text{(F.II.7.)}$$

Les valeurs de α et β présentées par la suite ont été calculées en privilégiant les valeurs de A_i et de B_i déduites des propriétés d'écoulement de l'eau (i = 1). Les résultats sont analogues à ceux présentés ci-dessous en prenant i = 2.

Quelle que soit la série d'échantillons analysée, le facteur correctif α n'est pas constant (tableau F.II.2.) : il augmente au fur et à mesure que la porosité diminue. De plus, pour une porosité donnée, la valeur de α correspondant à l'échantillon de la série I est plus élevée que celle correspondant à l'échantillon de la série II.

Par ailleurs, la valeur du coefficient β est très nettement supérieure à la valeur théorique de 2,133.

Ainsi, le modèle d'Ergun ne peut être étendu au cas d'un écoulement à l'intérieur d'un milieu poreux consolidé de porosité supérieure à 0,25 ($0,25 < \phi < 0,40$). Les facteurs correctifs α et β dépendent de la porosité globale (leur valeur augmente lorsque la porosité diminue). De plus, le facteur α semble dépendre de la taille des particules constituant le milieu.

		Modèle d'Ergun		Modèle de Comiti	
	ϕ_{AI}	α	β	γ	f
	0,40	2,083		1	
	0,378	4,14		2,63	
$50 < D_{p_1} < 62\ \mu m$	0,377	4,99		3,35	
	0,337	6,76		4,05	
	0,307	7,13		3,91	
	0,289			4,81	
	0,206			4,27	
	0,40	2,083	2,13	1	0,1936
	0,306	3,30		1,34	
	0,263	4,32	7,58	2,38	0,775
$290 < D_{p_2} < 320\ \mu m$	0,193			2,16	0,735
	0,172			2,55	0,749
	0,142			3,07	
	0,093			8,93	
	0,082			9,26	

Tableau F.II.2. : Coefficients intervenant dans les modèles d'Ergun et de Comiti évalués pour différentes porosités (ϕ_{AI}). Les valeurs correspondant à ϕ_{AI} = 0,40 sont celles proposées par Ergun et Comiti dans le cas d'empilements non consolidés.

b. Le modèle de Comiti

A la différence du modèle d'Ergun, ce modèle est a priori, adapté aux écoulements à l'intérieur d'un milieu poreux consolidé, quelle que soit sa porosité. Il fait lui aussi intervenir deux coefficients γ et f, tels que $0,6 < \gamma < 1,5$ et $f = 0,1936$ (cf. § A.II.3.).

α. Hypothèses

Afin de vérifier si ce modèle peut être étendu au cas d'un écoulement à l'intérieur d'un milieu poreux consolidé, nous avons formulé les hypothèses suivantes :

- la surface spécifique dynamique a_{vd} est identique à l'aire volumique S'_V : $a_{vd} = S'_V$
- la tortuosité T est telle que $T = \sqrt{Te}$: les valeurs de T sont celles déduites des propriétés de conductivité électrique (cf. § E.II.4.).

β. Calculs

A partir des valeurs de S'_V et de ϕ obtenues par analyse d'image et celles de A_i et B_i déduites des lois expérimentales de variation de $\Delta P/H$ en fonction de u_0, nous avons évalué γ et f :

$$\gamma = \frac{A_i \phi_{AI}^3}{2 \eta_i T^2 S'^2_V (1 - \phi_{AI})^2} \qquad \text{(F.II.8.)}$$

$$f = \frac{2 B_i \phi_{AI}^3}{\rho_i T^3 S'_V (1 - \phi_{AI})} \qquad \text{(F.II.9.)}$$

Les valeurs de γ et de f présentées par la suite ont été calculées en privilégiant les valeurs de A_i et B_i déduites des propriétés d'écoulement de l'eau ($i = 1$).

Les résultats sont analogues à ceux présentés ci-dessous en prenant $i = 2$.

γ. Résultats

Quelle que soit la série analysée, le coefficient de circularité γ varie avec la porosité (tableau F.II.2.) : il croît légèrement d'une valeur théorique ($\gamma = 1$) obtenue pour des empilements non consolidés ($\phi = 0,40$) à une valeur γ_c puis reste constant pour des porosités comprises entre 0,30 et 0,15 et croît brutalement lorsque la porosité passe de 0,15 à 0,05.

La valeur prise par γ_c dépend, à première vue, sensiblement de la taille des billes constituant le milieu poreux : elle est de l'ordre de 4 pour les échantillons de la série I ($50 < D_{p_1} < 62$ µm) et de 2 pour les échantillons de la série II ($290 < D_{p_2} < 320$ µm).

Dans les deux cas, elle est en dehors du domaine de variation proposé par Comiti.

De plus, le coefficient f reste constant quelle que soit la porosité (tableau F.II.2.). Sa valeur (de l'ordre de 0,75) est nettement supérieure à celle proposée par Comiti (f = 0,1936).

Remarque : Si les calculs de γ et f sont réalisés à l'aide des équations (A.II.22.) et (A.II.23.) dans lesquelles le paramètre d est égal au diamètre moyen du disque inclus $\bar{\delta}$, les résultats sont analogues à ceux présentés précédemment.
Les valeurs de γ obtenues dans ce cas sont légèrement supérieures à celles déduites de la relation (F.II.8.) et ce uniquement pour des porosités inférieures à 0,25.
Le facteur de frottement f a une valeur constante (voisine de 0,183) beaucoup plus proche de la valeur théorique de Comiti que celle obtenue selon l'équation (F.II.9.).

δ. *Interprétation*

Un tel écart entre les valeurs des coefficients γ et f déduites de nos résultats expérimentaux et celles proposées par le modèle de Comiti ne peut être totalement attribué à une imprécision de nos mesures.

Aussi, les hypothèses envisagées doivent être vérifiées. Pour ce faire, supposons que le modèle de Comiti est adapté pour décrire les propriétés d'écoulement d'un liquide à travers des milieux poreux consolidés. Dans ces conditions, nous pouvons évaluer dans les cas particuliers où la variation $\Delta P/H$ en fonction de u_0 est parabolique (tableau F.II.1.), la surface spécifique dynamique a_{vd} et la tortuosité hydraulique T_{calc} :

$$T_{calc} = \left[\frac{8 \gamma \eta_i B^2}{f^2 \rho_i^2 A} \phi^3 \right]^{1/4} \qquad \text{(F.II.10.)}$$

$$a_{vd} = \frac{2 B_i \phi_{AI}^3}{f \rho_i T^3 \left(1 - \phi_{AI}\right)} \qquad \text{(F.II.11.)}$$

avec i = 1, γ = 1 et f = 0,1936.

Le tableau F.II.3. montre alors que la surface spécifique dynamique est identique à l'aire volumique S_V mais que la tortuosité T_{calc} est très différente de T ($T_{calc} > T$).

Ainsi, l'hypothèse $T = \sqrt{Te}$ n'est pas vérifiée.

En conservant l'hypothèse $S_V = a_{vd}$, nous pouvons maintenant évaluer la tortuosité hydraulique T_{th} dans les cas où la variation de $\Delta P/H$ en fonction de u_0 est linéaire :

ϕ_{AI}	S_V' (cm^{-1})	T	T_{calc}	$-a_{vd}$ (cm^{-1})
0,142	97,05	1,65	2,73	99,49
0,172	108,71	1,70	2,53	112,34
0,193	116,15	1,54	2,30	106,86
0,263	151,32	1,38	2,17	145,02

Tableau F.II.3. : Vérification des hypothèses à partir des mesures réalisées sur les échantillons de la série II ($290 < D_{p_2} < 320$ µm) présentant une variation parabolique de $\Delta P/H$ en fonction de u_0.

	ϕ_{AI}	T	T_{th}	T_{calc}
$50 < D_{p_1} < 62$ µm	0,206	1,495	3,87	
	0,289	1,325	3,28	
	0,307	1,351	2,68	
	0,337	1,292	2,60	
	0,377	1,221	2,23	
	0,378	1,253	2,03	
$290 < D_{p_2} < 320$ µm	0,082	2,54	7,83	
	0,093	2,06	5,95	
	---	---	---	---
	0,142	1,65		2,73
	0,172	1,70		2,53
	0,193	1,54		2,30
	0,263	1,38		2,17
	0,306	1,31		

Tableau F.II.4. : Comparaison des valeurs de T déduites des mesures de conductivité électrique et calculées à partir des propriétés d'écoulement en supposant le modèle de Comiti vérifié.

$$T_{th} = \left[\frac{A_i \phi_{AI}^{3}}{2 \gamma \eta_i S_V'^{2} (1 - \phi_{AI})^2} \right]^{1/2} \qquad \text{avec } i = 1 \text{ et } \gamma = 1$$

Le tableau F.II.4. indique que, dans tous les cas, la tortuosité hydraulique T_{th} déduite des mesures d'écoulement est supérieure à celle déduite des propriétés de conductivité électrique $T_{th} > T$.

L'ensemble de ces résultats montre que le modèle de Comiti qui assimile l'espace poreux à un ensemble de tubes tortueux identiques et non connectés entre eux reste adapté pour expliciter les propriétés d'écoulement d'un liquide à travers des milieux poreux consolidés. Cependant, il fait intervenir une grandeur physique (la tortuosité T) accessible uniquement par des mesures d'écoulement.

5. Conclusion

La caractérisation des propriétés d'écoulement d'un liquide à l'intérieur d'un milieu poreux consolidé fait apparaître, comme dans le cas de milieux poreux non consolidés, deux régimes d'écoulement : l'un laminaire linéaire, l'autre laminaire non linéaire. Le passage de l'un à l'autre correspond à un nombre de Reynolds critique Re_c qui, selon les paramètres utilisés pour son calcul, est tel que :

$$2 \leq Re_c \leq 6$$

L'hypothèse des pores cylindriques formulée pour expliciter les lois expérimentales de variation de $\Delta P/H$ en fonction de u_0 reste adaptée à des milieux poreux consolidés ayant une porosité supérieure à 0,15. Cependant, il est préférable, comme le suggère le modèle de Comiti, d'écrire chaque coefficient A et B sous la forme d'un produit de trois termes : l'un caractérisant la texture poreuse proprement dite, l'autre le liquide et le dernier, à la fois, le solide et le liquide mis en jeu.

Dans les cas où cette précaution n'est pas nécessaire, c'est-à-dire lorsque le liquide mouille parfaitement la totalité de la surface du solide (cette condition est remplie dans notre étude pour les échantillons de porosité supérieure à 0,25), le modèle d'Ergun n'est pas applicable en toute rigueur puisqu'il fait intervenir des coefficients α et β qui varient avec la porosité.

D'une manière générale, l'approche faite dans le modèle de Comiti est adaptée aux problèmes d'écoulement dans les milieux poreux consolidés. L'application de ce modèle à de tels milieux nécessite cependant des études complémentaires concernant l'évolution, en fonction de la porosité, de la tortuosité hydraulique T.

Cette dernière ne semble pas être reliée d'une façon simple à la tortuosité électrique Te. Toutes deux semblent augmenter lorsque la porosité diminue. De plus, quelle que soit la porosité des milieux analysés, la tortuosité hydraulique est telle que $T > \sqrt{Te}$.

CONCLUSION

L'étude des propriétés d'écoulement d'un liquide à travers des milieux poreux consolidés met en évidence deux régimes d'écoulement différents :

- un régime laminaire linéaire caractérisé par une différence ΔP de pression entre les deux extrémités du milieu poreux proportionnelle à la vitesse du liquide. Il correspond à un domaine où les forces de viscosité sont prépondérantes.

- un régime laminaire non linéaire caractérisé par le fait que la variation de ΔP en fonction de la vitesse du liquide est une loi de type parabolique. Il correspond à un domaine où les pertes d'énergie cinétique occasionnées par des changements fréquents de direction du liquide ne sont plus négligeables devant les forces de viscosité.

Le passage de l'un à l'autre de ces deux régimes a lieu lorsque le nombre de Reynolds atteint une valeur critique Re_c qui, selon la technique utilisée pour évaluer le paramètre caractérisant l'espace poreux, varie entre 2 et 6.

Deux modèles, établis pour caractériser les propriétés d'écoulement d'un fluide à travers des milieux poreux non consolidés, ont été repris pour expliciter les lois expérimentales de variation de ΔP en fonction de la vitesse du liquide. Tous deux assimilent l'espace poreux à un réseau de tubes identiques non connectés entre eux.

Le modèle d'Ergun n'a pas donné satisfaction et ce quelle que soit la porosité du milieu analysé. Le modèle de Comiti semble par contre adapté.

L'analyse des propriétés d'écoulement d'un liquide à travers des milieux poreux consolidés a nécessité une étude des propriétés de conductivité électrique d'un électrolyte à travers de tels milieux ainsi qu'une caractérisation de la géométrie de leur espace poreux.

La caractérisation des propriétés de conductivité électrique d'un électrolyte saturant un milieu poreux consolidé a montré que le facteur de formation F, défini comme le rapport des résistivités du milieu saturé en électrolyte et de l'électrolyte seul, est indépendant de l'électrolyte utilisé et de la taille des billes composant le milieu. Il suit la loi d'Archie ($F = \phi^{-m}$) uniquement si la porosité ϕ est comprise entre 0,20 et 0,40 : le coefficient m est alors égal à 1,5 dans le cas où les particules composant le milieu sont sphériques. Pour des porosités inférieures à 0,20, le facteur de formation a une valeur nettement plus élevée que celle déduite de la loi d'Archie.

La caractérisation des textures poreuses par analyse d'image suggère que l'évolution, en fonction de la porosité, des grandeurs caractérisant :

- l'interface phase poreuse - phase granulaire dépend du matériau fritté (ici le verre) et non de la taille des grains composant le milieu ;

- l'espace poreux est directement lié à la géométrie de l'empilement avant frittage donc à "l'histoire" de l'empilement. Des mesures complémentaires ont montré que, même si le mode de préparation des échantillons était identique d'une série à l'autre, les milieux réalisés à partir de billes de diamètre D_{p_1} ($50 < D_{p_1} < 62$ µm) présentaient une porosité fermée alors que ceux constitués de billes de diamètre D_{p_2} ($290 < D_{p_2} < 320$ µm) n'en possédaient pas.

La comparaison des résultats obtenus par analyse d'image et par porosimétrie au mercure a montré que la surface spécifique déduite des mesures de porosimétrie prenait des valeurs bien différentes de celles données par l'analyse d'image, et ce quelle que soit la modélisation de l'espace poreux retenue.

Cette étude a, avant tout, permis de développer les applications d'une technique d'analyse récente et de préciser certains résultats de la littérature concernant les propriétés de conductivité électrique d'un électrolyte à l'intérieur de milieux poreux consolidés. Elle a également montré que l'approche faite par Comiti pour caractériser les propriétés d'écoulement d'un liquide à travers de tels milieux était mieux adaptée que celle d'Ergun. Cependant, avant de pouvoir être généralisé, le modèle de Comiti doit être testé sur d'autres types de milieux (empilements partiellement frittés de grains de forme variable).

NOTATIONS

a :	entier égal à 0 ou 1
A (X) :	aire de la phase X
a_{vd} :	surface spécifique dynamique
A_A (X) :	fraction surfacique de X
b :	entier égal à 0 ou 1
B, B_i :	élément structurant
B^c :	élément structurant utilisé pour la correction de bord et associé à B
$\mathfrak{C}$:	plan de coupe
$\mathfrak{C}_i$:	courbe $\mathfrak{C}_i : \mathfrak{P}_i \cap \mathfrak{S}$
C, C_1, C_2 :	constantes
d :	diamètre d'un tube, d'un pore
D :	diamètre de la colonne ou des échantillons
De :	densité du matériau
dL :	longueur élémentaire
dP :	chute élémentaire de pression
d (z) :	fonction densité du paramètre z : $d(z) = \partial D(z)/\partial z$
D (z) :	fonction de distribution du paramètre z
D_p :	diamètre de particule
D_{pi}, D_i :	diamètres de particules
D_H (K), D_V (K) :	diamètres de Ferret horizontal et vertical
dA_2 :	surface associée à un pixel
dL_1 :	distance séparant 2 pixels dans une direction privilégiée de la trame
dL_2 :	distance entre deux droites de la trame

$\mathfrak{D}$: domaine de mesure

$\mathfrak{D}_i$: champ de mesure

E (G) : espérance mathématique de G

f : facteur de frottement

F : facteur de formation

F_e : résultante des forces extérieures

F (z) : fonction de distribution en mesure

g : grandeur

G : estimateur de g

$\bar{g}$: valeur moyenne de g

g_e : valeur exacte de g

g_i : valeur de g mesure sur l'image i

G (z) : fonction de distribution en mesure

h : hauteur

H : hauteur de la colonne ou du milieu poreux

H (s) : courbure moyenne dans R^3 d'un point d'abscisse s

$\overline{H}$ (X) : courbure moyenne dans R^3 de la phase X par unité de volume

h_i : distance du centre de la sphère de rayon R_j au plan de coupe conduisant à un disque de rayon R_i

H_1, H_2 : hauteurs

i : nombre de bits utilisés pour le codage de l'image numérique ;
nombre de sphères associées dans un fritté de billes de verre

I_b, I_b' : image binaire

k :	perméabilité
K :	objet d'une image
k', k_1, k_2 :	constantes
k_R :	paramètre de résolution
l :	intercept
$\bar{l}_n$, $\bar{l}$:	intercepts moyens en nombre, en mesure
L :	longueur du tube
L_H, L_V :	longueur et largeur du domaine $\mathfrak{D}_i$
L_A (X) :	périmètre spécifique de X
L_L (X) :	fraction linéique de X
m :	coefficient de cimentation
M, M' :	coefficients numériques
M (X) :	intégrale de courbure moyenne de X dans R^3
m_e :	masse de l'échantillon
M_V (X) :	intégrale de courbure moyenne de X dans R^3 par unité de volume
$\mathcal{M}$:	point de l'espace
n :	nombre de pores
N, N' :	coefficients numériques
n_c :	nombre de champs
n_p :	nombre de points, de mesures
N_A (X) :	nombre de connexité de X dans R^2, par unité de surface
N_i (X) :	nombre de connexité dans R^i de X
N_L (X) :	nombre de connexité de X dans R^1, par unité de longueur
N_p (X) :	fraction numérique de points présents dans la phase X

$N_V(X)$:	nombre de connexité de X dans R^3, par unité de volume
N_{A_i} :	nombre de disques, par unité d'aire, de rayon R_i
$N_{A_{i,j}}$:	nombre de disques, par unité d'aire, de rayon R_i ; correspondant à la section d'une sphère de diamètre R_j
$N_k(X, i)$:	nombre de connexité dans R^k selon la direction privilégiée i de la trame
$N_{V_j}(X)$:	nombre de particules, dans R^3, de X, par unité de volume de rayon R_j
$N_2^+(X)$:	nombre de connexité dans R^2 de X
$N_2^-(X)$:	nombre de concavité dans R^2 de X
$\mathcal{N}_b$:	nombre de billes
$\mathcal{N}_p$:	nombre de pixels présents dans une image
p :	pression imposée au mercure
P :	pression hydrostatique
p_i :	pression au point i
p_{max} :	pression maximale imposée au mercure
P_s, P_e :	pression à la sortie et à l'entrée du milieu poreux
$P'(z)$:	dérivée de z
$P_i(z)$:	fonction de z
$\mathcal{P}$:	plan
$\mathcal{P}_i$:	plan principal
$\mathcal{P}_{i,j}$:	probabilité qu'une sphère de rayon R_j soit coupée par un disque de rayon R_i
Q:	débit volumique
r, r', r" :	rayon d'un tube
R, R_1 :	résistances électriques

Re :	nombre de Reynolds
Re_c :	nombre de Reynolds critique
R^k :	espace de dimension k
r_e :	rayon d'entrée des pores
r_H :	rayon hydraulique
r_i :	résistance du pore i
$\bar{r}_e$:	rayon moyen d'entrée des pores
R_i :	rayon d'un disque
R_j :	rayon d'une sphère
R_{max} :	rayon maximal de la sphère
R_p :	rayon moyen de particules
R_s :	résistance du solide
$\mathfrak{R}$ (s) :	rayon de courbure dans R^3 en un point d'abscisse s
$\mathfrak{R}'$ (s) :	rayon de courbure dans R^2 au point d'abscisse s
$\mathfrak{R}_i$:	coefficient de rétrécissement
$\mathfrak{R}_{1,2}$ (s) :	rayon de courbure dans R^3 minimal et maximal en un point d'abscisse s
s :	abscisse curviligne
S :	section de la colonne
s_i :	section du pore i
S_k :	surface de l'objet K
S_i :	surface du disque de rayon R_i
S_V (X) :	surface spécifique de X
S'_V :	surface volumique de solide (surface de solide/volume de solide)
St_2 (X) :	fonction étoile dans R^2 de X
St_3 (X) :	fonction étoile dans R^3 de X

$\mathcal{S}$: surface courbe

t : temps

T : transformation

T, T' : tortuosité

T_e : tortuosité électrique

T_λ : transformation appliquée λ fois

$\mathcal{T}$: température

$\mathcal{T}_e$: température de mise en équilibre thermique

$\mathcal{T}_f$: température de frittage

u : vitesse en un point $\mathcal{M}$

u_0 : vitesse après traversée du milieu

U_0, U_1 : tensions électriques

V : volume de la colonne

V_p, V_g : volume poreux, volume granulaire

V_{p_i} : volume poreux accessible par le mercure sous l'effet de la pression p

V_V (X) : fraction volumique de X

$V^0_{p/g}$: volume poreux associé à un grain dans l'empilement non consolidé

W : paramètre stéréologique

x : pixel

X, X_i : phase objet

Y : phase objet

z : réel

Z, Z' : masques de mesures

α, β : facteurs correctifs

γ : coefficient de circularité

γ_0 : tension superficielle

Γ_m : résistivité offerte par le milieu composite liquide conducteur - solide

Γ_0 : résistivité de l'électrolyte

δ : diamètre du disque inclus

$\overline{\delta}$: diamètre moyen en mesure du disque inclus

$\overline{\delta}_n$: diamètre moyen en nombre du disque inclus

ΔL : longueur d'un segment

ΔP : chute de pression $\Delta P = |P_s - P_e|$

$\Delta P_1, \Delta P_2$: perte d'énergie volumique

ΔV : variation de volume

λ, λ_i : entier

λ_{max} : valeur maximale de λ

Σ : section de l'échantillon

$\sigma(z)$: écart type de la distribution de z

θ : angle de contact

η : viscosité dynamique

ϕ : porosité

ϕ' : porosité mesurée par le L.C.P.C.

ϕ^0 : porosité de l'empilement initial

ϕ_{AI} : porosité mesurée par analyse d'image

ϕ_{Hg} : porosité mesurée par porosimétrie au mercure

ρ : masse volumique

ν : viscosité cinématique

χ : fraction d'énergie cinétique volumique

BIBLIOGRAPHIE

AHMED N. et SUNADA D.K. ; J. Hydraul. Div. - Proc. ASCE ; 1969, 95 1847

BASS J. ; Cours de Mathématiques, Masson et Cie ; 1961 ; 1

CARMAN P.C. ; Trans. Inst. Chem. Engrs ; 1937 ; 15 : 150

CHARPIN J. et RASNEUR R. ; Techniques de l'Ingénieur ; 1987 ; 1050

CHILDS E.C. et COLLIS-GEORGE N. ; Proc. Roy. Soc. Lond. ; 1950 ; A 201 : 392

CLYDE ORR Je. ; Powder Technology ; 1969 - 70 ; 3 : 117 - 123

COMITI J. ; Thèse, Institut National Polytechnique de Grenoble ; 1987

CONNES A. ; Supplément du Bulletin de la Société Mathématique de France, Edition Gauthier Villars ; 1987 ; 115

CONSTANTINIDES G.N. et PAYATAKES A.C. ; Chem. Eng. Commun. ; 1989 ; 81 : 55 - 81

CORONEL L. ; Thèse, Université de Caën ; 1989

COSTER M. et CHERMANT J.L. ; Précis d'analyse d'images ; Editions du C.N.R.S. ; 1985

DULLIEN F.A.L. ; Porous Media : Fluid Transport and Pore Structure ; Academic Press ; 1979

ERGUN S. ; Chem. Eng. Prog. ; 1952 ; 48 (2) : 89

ERGUN S. et ORNING A.A. ; Industrial and Engineering Chemistry ; 1949 ; 41 (6) : 1179

FROST H.J. et RAJ R. ; Communication of the American Ceramic Society ; 1982 ; 65 (2) : C 19 - 21

GAUTHIER C. BORGOTTI J.C. et SADOUDI A. ; C.R. Acad. Sci. Paris ; 1988 ; 306 II : 1309 - 12

GILARD P. et DUBRUL L. ; Les Bases Physico-Chimiques de l'Industrie du Verre ; Dunod ; 1937

JACKSON P.D., TAYLOR SMITH D. et STANFORD P.N. ; Geophysics ; 1978 ; 43 (6) : 1250 - 68

JACQUET C. et THOMAS G. ; Proceedings of Symposium on Caracterization of Porous Solids ; 1990 ; Alicante, 6 - 9 mai

JACQUET C. et THOMAS G. ; Collection Récents Progrès en Génie des Procédés ; Editions Lavoisier ; 1991 ; 5 (14) : p 129-34

JACQUET C., VERHAEGHE O. et THOMAS G. ; Collection Récents Progrès en Génie des Procédés ; Editions Lavoisier ; 1991 ; 5 (14) : p 141-46

JONES W.M. et MILLS D. ; British Journal of Applied Physics ; 1961 ; 12 : 172

LANTUEJOUL ; Microscopica Acta ; 1980 ; Suppl. 4 : 265

MAC DONALD I.F., EL-SAYED M.S., MOW K. et DULLIEN F.A.L. ; Ind. Eng. Chem. Fundam. ; 1979 ; 18 (3) : 199 - 208

MARMUR R. et RUBIN E. ; Ind. Eng. Chem. Fundam. ; 1972 ; 11 : 497

MARSHALL T.J. ; J. Soil. Sci. ; 1958 ; 9 (1)

MISSIAEN J.M. ; Thèse, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint-Etienne ; 1989

PAYATAKES A.C., TIEN C. et TURIAN R.M. ; Amer. Inst. Chem. Engrs. J. ; 1973 ; 19 : 58 - 67

PFANNKUCH O.H. ; Inst. Geol. Congr. ; 1972 ; Section 11 : 191

PURCELL W.R. ; Petroleum Transactions - AIME ; 1949 ; 39

ROBERTS J.N. et SCHWARTZ L.M. ; Phys. Rev. B. ; 1985 ; 31 (9) : 5990 - 97

SERRA J. ; Image Analysis and Mathematical Morphology ; Ac. Press ; 1982

SCHEIDEGGER A.E. ; The Physics of Flow trhough Porous Media ; University of Toronto Press ; 1960

TRITTON D.J. ; Physical Fluid Dynamics ; Van Nostrand Reinhold ; 1977

UNDERWOOD E.E. ; Quantitative Stereology ; Addison Wesly ; 1970

VERHAEGHE O. ; D.E.A., Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint-Etienne, 1990

WALSH J.B. et BRACE W.F. ; Geophys. Res. ; 1984 ; 89 (B 11) : 9425 - 31

WINSAUER W.O., SHEARIN H.M., MASSON P.H. et WILLIAMS M. ; Bull. Am. Ass. P. et Geol. ; 1952 ; 36 : 253

WYLLIE M.R.J. et GREGORY A.R. ; Industrial and Engineering Chemistry ; 1955 ; 47 (7) : 1379 - 88

WYLLIE M.R.J. et SPANGLER M.B. ; Bul. Amer. Ass. Pet. Geol. ; 1952 ; 32 (2) : 359 - 403

ANNEXES

ANNEXE 1 :

FACTEUR DE FORMATION ET TORTUOSITE HYDRAULIQUE

Reprenons les mêmes hypothèses concernant le milieu poreux que celles faites pour l'élaboration du modèle de Comiti. Le milieu est contenu dans un cylindre de diamètre D, de hauteur H, de volume V et de section S. L'espace poreux est assimilé à n pores cylindriques et tortueux de diamètre d et de longueur L non connectés entre eux. La résistance électrique R d'un tel système est telle que :

$$R = \Gamma_m \frac{H}{S} \qquad (1.1.)$$

Γ_m est la résistivité du milieu composite liquide conducteur-solide. Mais en considérant le milieu composé de deux phases disposées en parallèle : la phase poreuse constituée de n tubes présentant chacun une résistance électrique r_i, et la phase solide présentant une résistance électrique R_S, nous pouvons écrire R sous la forme :

$$\frac{1}{R} = \sum_{i=1}^{n} \frac{1}{r_i} + \frac{1}{R_S} \qquad (1.2.)$$

Or, par définition : $r_i = \Gamma_0 \frac{L}{s_i}$ (1.3.)

avec : s_i : aire de la section droite d'un pore
Γ_0 : résistivité du liquide conducteur.

et pour un solide isolant $1/R_S = 0$:

$$\frac{1}{R} = \frac{1}{\Gamma_0 L} \left(\sum_{i=1}^{n} s_i \right) \qquad (1.4.)$$

De plus, si $i \neq j$ alors $s_i = s_j$. Ainsi : $R = \Gamma_0 L \frac{1}{n\, s_i}$ (1.5.)

D'autre part : $\phi = \frac{n\, s_i L}{HS}$ (1.6.)

et : $T = \frac{L}{H}$ (1.7.)

En reportant dans (1.5.), nous avons : $$R = \Gamma_0 \frac{T^2}{\phi} \frac{H}{S} \qquad (1.8.)$$

En égalant (1.1.) et (1.8.), nous obtenons : $$\Gamma_m = \Gamma_0 \frac{T^2}{\phi} \qquad (1.9.)$$

En reportant dans (A.III.1.), nous avons : $$F = \frac{T^2}{\phi} \qquad (1.10.)$$

ANNEXE 2 :

POROSIMETRIE AU MERCURE

I. Principe

Considérons un pore dont l'orifice d'entrée est supposé circulaire, de rayon r_e. La tension de surface γ_0 du mercure agit sur la zone de contact entre les 3 phases (liquide, solide, gaz), c'est-à-dire sur le périmètre du cercle d'entrée. La force $\vec{f}_1$ qui en découle tend à empêcher la pénétration du liquide non mouillant à l'intérieur du pore.

Sa projection suivant la normale au plan du disque de contact est égale à $2\pi r_e \gamma_0 \cos\theta$ (Clyde/Orr, 1970), si θ est l'angle de contact du mercure sur le milieu solide ($\theta > 90°$ si le liquide est non mouillant). D'autre part, une force $\vec{f}_2$ résultant de l'application d'une pression p extérieure au mercure tend à faire pénétrer le liquide à l'intérieur du pore. Elle agit sur la surface du disque de rayon r_e.

Ainsi :

$$\frac{f_2}{\pi r_e^2} = p \qquad (2.1.)$$

A l'équilibre, ces deux forces s'annihilent, soit :

$$p = \frac{2\gamma_0 \cos\theta}{r_e} \qquad (2.2.)$$

II. Protocole opératoire

Une analyse par porosimétrie au mercure consiste à augmenter la pression appliquée sur le mercure et à relever le volume de mercure correspondant qui a pu pénétrer à l'intérieur du milieu analysé (cf. § C.I.1.). Cette augmentation de pression s'effectue en deux étapes et sur deux dispositifs expérimentaux distincts : d'une pression de l'ordre de 10 Pa (10^{-1} mbar) à la pression atmosphérique d'une part, et de la pression atmosphérique (10^5 Pa) à une pression maximale que l'on peut choisir inférieure ou égale à 2.10^8 Pa (2000 bars) d'autre part.

1. Dispositif "basse pression"

Cette partie du montage permet de faire varier la pression de 10 Pa environ, à la pression atmosphérique (10^5 Pa) : les rayons d'entrée des pores sont compris entre 40 et 7 µm environ.

a. Mise en place

L'échantillon, préalablement pesé, est placé dans une cellule (15 cm^3 environ) composée d'un dilatomètre (d'un centimètre de diamètre) sur lequel vient s'emboîter un capillaire (de 1,5 mm de rayon). La cellule est alors mise sous vide à l'aide d'une pompe à palettes. Le pompage s'effectue pendant une vingtaine de minutes, permettant ainsi un dégazage supposé suffisant de l'échantillon. La durée du dégazage a été choisie empiriquement (elle doit être beaucoup plus importante si la taille des pores est très faible). Le mercure est alors introduit, lentement, à l'intérieur de la cellule. Son niveau le long du capillaire est relevé à l'aide d'un vernier (permettant une précision de 0,1 mm) et le pompage est alors interrompu.

b. Acquisition des points expérimentaux

L'acquisition est semi-automatique. En effet, l'opérateur par ouverture d'un vanne permettant l'arrivée d'un gaz (N_2) dans la cellule fait croître la pression p appliquée au mercure. Celui-ci pénètre donc à l'intérieur des pores de rayon r_e (s'il y en a) et voit son niveau s'abaisser le long du capillaire. Pour une pression p fixée, la hauteur de variation du niveau de mercure est repérée à l'aide du vernier par l'expérimentateur. Ce dernier signale alors à l'ordinateur qu'il peut prendre en mémoire ces deux données. Cette procédure est réitérée jusqu'à ce que la pression atmosphérique soit atteinte (100 kPa).

2. Dispositif "haute pression"

Il permet de faire varier la pression de la pression atmosphérique à 2.10^8 Pa, donnant ainsi accès à des pores de rayon d'entrée compris entre 7 µm et 4.10^{-3} µm.

a. Principe

Lorsque la pression atmosphérique est atteinte sur le dispositif "basse pression", la cellule est placée dans une enceinte hermétique sur un autre type d'appareil. Celui-ci est composé de deux circuits d'huile : l'un nécessitant une huile résistante aux fortes pressions, l'autre une huile résistante aux faibles pressions. L'enceinte est alors totalement remplie d'huile susceptible de résister aux fortes pressions. La fermeture d'une vanne empêche alors toute communication entre les deux réservoirs d'huile "haute" et "basse" pression. Le moteur est alors mis en route permettant ainsi l'augmentation de la pression : l'huile "basse pression" se déplace à une vitesse préalablement choisie et pousse ainsi vers le haut, le piston. Ce dernier transmet la pression au mercure entourant l'échantillon. L'augmentation de pression se traduit par un abaissement du niveau du mercure le long du capillaire. Cette variation de hauteur est directement liée à la variation de la capacité du condensateur composé de deux plaques reliées chacune à une des deux extrémités de la cellule. Lorsque le capteur de pression mesure une pression égale à la pression maximale préalablement choisie, les deux réservoirs d'huile sont mis en communication automatiquement, conduisant à la diminution de la pression jusqu'à la pression atmosphérique. Cette diminution s'effectue sans contrôle possible de la vitesse.

b. Acquisition des points expérimentaux

Elle est entièrement automatique. Le volume poreux est relié à une variation de capacité déduite de mesures électriques. La pression est mesurée directement à partir d'un capteur.

c. Conditions expérimentales

Nous avons choisi une vitesse du moteur, identique pour toutes les analyses, relativement faible pour éviter les erreurs de mesure susceptibles d'apparaître si les phénomènes d'inertie (transmission de la pression, etc...) sont importants.

3. Résultats

a. Description

Les résultats obtenus sont résumés dans la courbe de variation V_p (r_e) similaire à celle présentée sur la figure 2.2. La courbe représentée sur la figure 2.1. est en fait la représentation de deux phénomènes :

- intrusion du mercure (augmentation de p) à partir de laquelle sont tirés tous les résultats
- extrusion du mercure (diminution de p) : elle met en évidence un phénomène d'hystérésis très marqué et non encore parfaitement expliqué même s'il a déjà fait l'objet de nombreux travaux (Charpin et Rasneur).

b. Calculs des valeurs présentées :

- La pression :

Les deux dispositifs (haute et basse pression) tels qu'ils ont été décrits précédemment permettent une mesure directe de la pression. Cependant, les courbes sont présentées avec des valeurs de pression exactes. Celles-ci sont déduites des pressions mesurées auxquelles a été ajoutée la pression due à la colonne de mercure présente au-dessus de l'échantillon au début de l'analyse, sa hauteur est de l'ordre de 10 cm.

- Les rayons d'entrée :

Ils sont calculés à partir de l'équation de Washburn (2.2.) dans laquelle :

$$\gamma_0 = 480 \text{ mN/m}^2 \qquad (2.3.)$$

$$\theta = 141{,}3° \qquad (2.4.)$$

Ces valeurs sont données par le fournisseur.

Notons simplement que θ dépend, en théorie, à la fois du mercure et de la nature du milieu analysé. La valeur de θ prise pour les calculs est en réalité une valeur moyenne.

- Les volumes poreux :

Ils sont calculés à partir des volumes poreux mesurés auxquels s'est greffé un facteur de correction tenant compte de la compressibilité du mercure. Le coefficient de compressibilité du mercure peut varier au fur et à mesure des recyclages. Il est donc conseillé de faire, pour l'évaluer, des essais à blanc, si l'on veut augmenter la précision des mesures.

- Autres grandeurs :

Les valeurs du rayon moyen calculé par le logiciel ne correspondent pas à celles évaluées par ailleurs à partir de l'équation (C.I.3.) : elles n'ont pas été prises en compte. De plus, le logiciel permet d'évaluer des surfaces spécifiques en prenant différents modèles pour représenter l'espace poreux. L'expression littérale de ces surfaces a été vérifiée pour les modèles de pores cylindriques et plats (C.I.5. et C.I.8.) mais pas dans le cas de pores coniques ou en bouteille d'encre. Les valeurs n'ont donc pas été exploitées dans ces deux derniers cas.

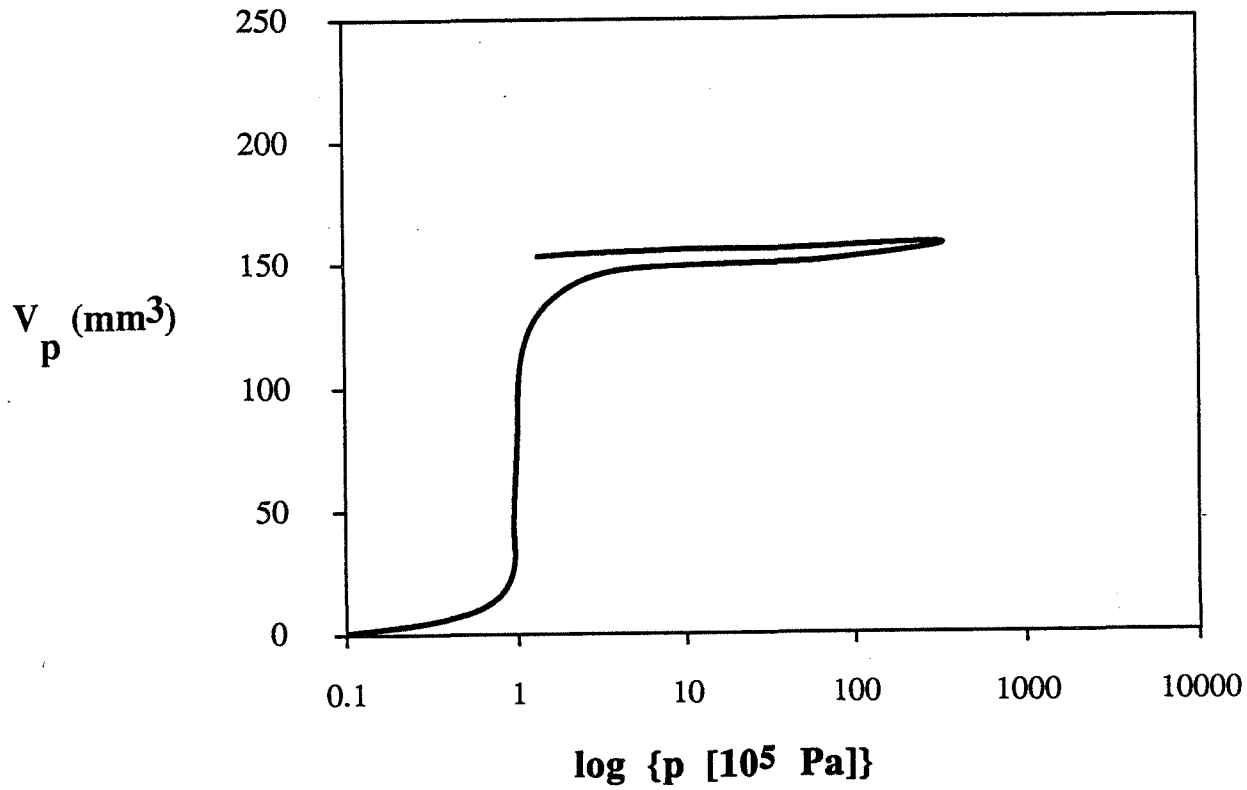


Figure 2.1. : Exemple de courbe expérimentale obtenue par porosimétrie au mercure.

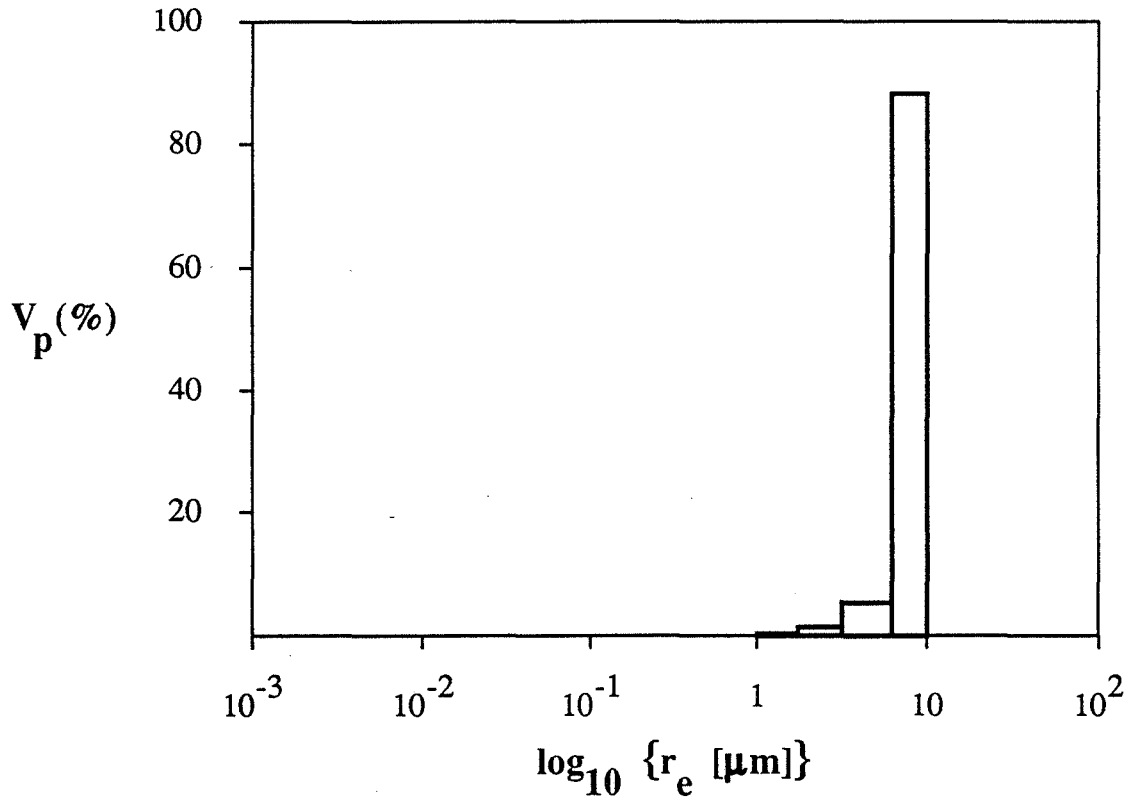


Figure 2.2. : Exemple de distribution de taille de pores obtenue par porosimétrie au mercure.

ANNEXE 3 :

ANALYSE D'IMAGE

Dans cette annexe, nous décrirons l'analyse d'image comme un outil utilisé dans un but bien précis : caractériser la structure (ou morphologie) de nos échantillons. Ce choix se traduit par le fait que :

- le caractère général de cette méthode est totalement omis (cf. Serra) ;
- toutes les possibilités offertes par cette technique n'apparaîtront pas dans ce qui suit (analyse de forme, d'homogénéité, etc...) : pour de plus amples informations, le lecteur devra consulter des ouvrages plus spécialisés (Coster et Chermant, 1985) ;
- seules les notions nécessaires à la compréhension de nos résultats seront mentionnées ; de plus, la liste des grandeurs retenues pour caractériser les milieux poreux n'est pas exhaustive ;
- les notations utilisées ne correspondent pas toujours à celles imposées par la nomenclature habituelle.

Pour être comprise, cette annexe nécessite la connaissance du principe d'une mesure par analyse d'image (cf. § C.II.1.).

I. Définitions

Remarque préliminaire : Signalons maintenant au lecteur que nous n'avons pas analysé, comme c'était le cas pour la porosimétrie au mercure, uniquement les empilements consolidés utilisés pour l'étude des écoulements, mais aussi des empilements non consolidés. Ces deux types de milieu diffèrent de par leur composition : les premiers sont constitués de deux phases continues alors que les secondes présentent également deux phases, mais l'une est continue (l'espace poreux) et l'autre discontinue (composée d'un ensemble de particules disjointes que l'on peut compter).

Cette remarque a pour but d'introduire la notion de dénombrement qui va suivre.

1. Nature des paramètres

Si une grandeur est déduite d'une mesure directe, elle est **métrique** ; si elle résulte d'un dénombrement, elle est **topologique. La stéréologie** relie en fait une grandeur métrique de l'espace de dimension n à un paramètre topologique de l'espace de dimension (n - 1).

Comme nous le verrons plus loin avec les distributions granulométriques, certaines mesures réalisées dans un espace de dimension (n - 1) peuvent ne pas être reliées à une grandeur dans l'espace de dimension n ; de tels paramètres, dits **paramètres généraux** (Coster, p. 19) peuvent toutefois nous donner des informations intéressantes et ne sont pas à négliger.

2. Masque et champ de mesures

Le masque de mesures est la zone où la mesure est réalisée : avec nos notations, le domaine $\mathfrak{D}$ sera appelé masque de mesures.

Comme nous le préciserons par la suite, afin de minimiser les erreurs de mesure, il est préférable de réaliser les mesures sur plusieurs domaines élémentaires appelés **champs de mesures** et notés $\mathfrak{D}_i$. Ainsi : $\mathfrak{D} = \cup \mathfrak{D}_i$.

3. Echelle d'analyse

Si le domaine $\mathfrak{D}_i$ est inclus dans le plan de section, nous effectuons une **analyse locale** du milieu. Par contre, si $\mathfrak{D}_i$ contient le plan de coupe, nous parlons d'une **analyse globale** (Missiaen, p. 97). Cette définition est nécessaire pour justifier le choix des paramètres stéréologiques adaptés à notre étude.

Après ces définitions, nous pouvons préciser chacune des étapes qui composent une analyse d'image. Par souci de clarté, nous commencerons par la dernière étape : c'est elle en effet qui va imposer des conditions quant au choix du plan de coupe. Nous respecterons ensuite l'ordre chronologique proposé au paragraphe C.II.1., à savoir la sélection du plan de coupe, l'acquisition de l'image puis la mesure réalisée sur une image.

II. Quelques notions de stéréologie

Avant de présenter les relations stéréologiques, nous allons répertorier les paramètres ou grandeurs stéréologiques adaptés à notre étude.

1. Paramètres stéréologiques

Pour choisir les paramètres stéréologiques adaptés à notre étude, nous devons tenir compte de deux faits :

- les phases analysées sont de dimension 3,
- notre analyse est locale.

La première condition nous oblige à travailler avec des paramètres de base bien spécifiques. Sachant que nous disposons d'un objet X de dimension 3, ces paramètres peuvent être définis dans quatre espaces de dimension 3, 2, 1 et 0.

La seconde condition nous dit que, pour être significatifs, ces paramètres doivent être ramenés à l'unité d'espace dans lequel ils sont définis (Coster, p. 34, 1985). Ainsi, un paramètre défini dans un espace de dimension 3, 2, 1 ou 0 doit être rapporté à l'unité de volume, surface, longueur et points respectivement, pour être exploitable. Cette remarque est également valable pour les paramètres généraux. Nous trouverons donc :

* Dans un espace de dimension 3 noté R^3 :

- la fraction volumique V_V (X) égale au volume de l'objet X par unité de volume total. Exemple : si l'objet est la phase poreuse, (granulaire) V_V (X) est la porosité (compacité) ;

- la surface spécifique S_V (X) égale à la surface délimitant la phase X par unité de volume d'empilement ;

- l'intégrale de courbure moyenne par unité de volume M_V (X) : nous avons donné une signification physique à cette grandeur (cf. C.II.2.a.γ.) ;

- le nombre de connexité par unité de volume N_V (X). Sa signification physique dans un cas général ne sera pas précisée ; si l'objet analysé est composé de particules compactes et disjointes, N_V (X) représente le nombre de particules par unité de volume.

* Dans un espace de dimension 2 noté R^2 :

- la fraction surfacique A_A (X) est égale au rapport de la surface occupée par la phase X dans un plan et de l'aire du plan ;

- le périmètre spécifique L_A (X) est le périmètre de la phase X par unité de surface analysée ;

- le nombre de connexité par unité de surface N_A (X) : si l'objet analysé est composé de particules homéomorphes à un disque, N_A (X) est le nombre de sections de l'objet par unité de surface.

* Dans un espace de dimension 1 noté R^1 :

- la fraction linéique L_L (X) égale au rapport de la longueur occupée par la phase X et de la longueur totale étudiée ;

- le nombre de connexité par unité de longueur N_L (X) est le nombre de segments (ou **intercepts**) coupant la phase X par unité de longueur.

* Dans un espace de dimension 0 noté R^0 :

- la fraction de points N_P (X) est le nombre de points occupés par la phase X divisé par le nombre total de points disponibles à l'étude.

Nous n'en dirons pas davantage sur la signification physique de chacun de ces paramètres. Pour plus d'informations sur ce sujet, le lecteur est renvoyé aux ouvrages de Missiaen (p. 99) ou de Coster (p. 34). Signalons simplement que pour notre étude, nous utiliserons davantage les paramètres métriques V_V (X), S_V (X) et M_V (X) définis dans l'espace de dimension 3. Ces derniers sont impérativement calculés à partir de relations stéréologiques faisant intervenir certains paramètres des espaces de dimension inférieure : c'est pour cette raison que tous ces paramètres ont été répertoriés mais tous ne seront pas utilisés.

D'autre part, les nombres de connexité de la phase X définis dans R^0, R^1, R^2 et R^3 seront notés N_0 (X), N_1 (X), N_2 (X), N_3 (X) lorqu'ils ne seront pas ramenés à l'unité de points, de longueur, de surface et de volume.

2. Relations stéréologiques

Les principales relations stéréologiques sont présentées dans le tableau (3.1.). Elles ont été établies et sont valables dans des conditions particulières que nous mentionnerons dans le prochain paragraphe.

Espace	Paramètres			
R^3	$V_V(X) = N_P(X)$	$S_V(X) = 4N_L(X)$	$M_V(X) = 2\pi N_A(X)$	$N_V(X)$
R^2	$A_A(X) = N_P(X)$	$L_A(X) = \pi N_L(X)$	$N_A(X)$	
R^1	$L_L(X) = N_P(X)$	$N_L(X)$		
R^0	$N_P(X)$			

Tableau 3.1. : Relations stéréologiques dans le cas d'une analyse locale d'un objet X de dimension 3 (d'après Coster et Chermant, 1985, p. 35).

Remarque : L'écriture des relations stéréologiques du tableau 3.1. n'est pas rigoureuse. En effet, la grandeur g (par exemple V_V (X) ou L_A (X)) a en réalité une valeur exacte g_e. Cette dernière n'est pas accessible par la mesure mais la stéréologie permet de s'en approcher en évaluant une grandeur G, appelée estimateur de g. Ainsi, il serait plus rigoureux d'écrire g = E (G) où E est l'espérance mathématique. Dans ces conditions, la valeur la plus probable de G est g. Ainsi, le signe d'égalité utilisé dans le tableau 3.1. est en fait un abus de langage que nous adopterons afin d'alléger les notations. Notons tout de même que la notation rigoureuse a été utilisée par Missiaen dans ses travaux (p. 99).

3. Conditions d'Hadwiger

Pour être applicables, les relations stéréologiques présentées précédemment relient entre eux des paramètres stéréologiques qui doivent impérativement vérifier les quatre conditions d'Hadwiger (Coster, p. 20). Ainsi, les paramètres stéréologiques doivent être :

- continus : une définition rigoureuse de cette propriété serait difficile à présenter. Nous dirons simplement qu'un paramètre est continu s'il ne varie pas de façon brutale sous l'effet d'une petite déformation du milieu analysé ;

- additifs : en supposant l'objet composé de deux types d'éléments notés X et Y, cette propriété s'écrit, si W est le paramètre stéréologique retenu : $W(X) + W(Y) = W(X \cup Y) + W(X \cap Y)$;

- homogènes : la valeur prise par ces paramètres est indépendante, aux erreurs expérimentales près bien sûr, du grossissement utilisé pour l'observation du milieu analysé ;

- invariants par translation ou rotation : la valeur prise par le paramètre considéré est indépendante de la position du domaine $\mathfrak{D}$ analysé dans l'échantillon.

Cette propriété est largement mise en défaut, quel que soit le paramètre stéréologique retenu, si l'échantillon analysé est un empilement "ordonné" de fibres réparties parallèlement les unes aux autres. L'étude d'un domaine $\mathfrak{D}$ prélevé sur une section parallèle aux fibres conduit à un résultat totalement différent de celui obtenu sur une section perpendiculaire à la direction des fibres.

Dans la plupart des cas, ces conditions sont vérifiées. Cependant, la dernière propriété, plus facilement mise à défaut comme nous venons de le voir, nécessite de prendre quelques précautions quant à la nature du milieu et à la position de la section étudiés.

III. Choix du plan de section en analyse locale

1. L'échantillon est isotrope, aléatoire, homogène

En analyse locale, si l'échantillon analysé est isotrope (pas d'orientation préférentielle), aléatoire (pas d'ordre à longue distance) et homogène (répartition uniforme de X à l'intérieur de l'échantillon), les conditions d'Hadwiger sont toujours vérifiées, quels que soient la position du plan de coupe $\mathfrak{C}$ et le domaine $\mathfrak{D}$ étudiés. Dans ce cas, un seul plan de coupe est, en pratique, effectué. Mais, dans le seul but de diminuer les erreurs faites sur chaque mesure, le domaine $\mathfrak{D}$ est composé d'un nombre n_c de champs de mesures disjoints. Chaque champ de mesures $\mathfrak{D}_i$ est un domaine (de forme quelconque mais souvent rectangulaire) privilégié de $\mathfrak{D}$:

$$\mathfrak{D} = \bigcup_{i=1}^{n_c} \mathfrak{D}_i$$

2. L'échantillon n'est pas isotrope, aléatoire, homogène

D'après Missiaen (p. 105), nous admettrons que les relations stéréologiques sont applicables (donc que les conditions d'Hadwiger sont respectées) si la position et l'orientation du plan de section sont aléatoires. Nous dirons, par abus de langage, que cette section est isotrope, uniforme et aléatoire. Si, dans la pratique, la section obtenue est suffisamment grande par rapport à la taille de l'échantillon, les mesures faites à partir de n_c champs de mesure prélevés sur cette section sont considérées comme satisfaisantes. Dans le cas contraire, nous conseillons d'effectuer les mesures sur différents champs de mesures prélevés sur plusieurs sections i.u.a.

IV. Acquisition des images

1. Principe

Cette opération utilise comme outil principal, la morphologie (nous verrons plus loin de quelle manière). Elle a pour but de coder sur un réseau régulier (ou image) de points (ou pixels) une vue d'un domaine restreint $\mathfrak{D}_i$ du plan de section $\mathfrak{C}$ (préalablement poli). Dans un codage binaire, la valeur 1 est attribuée à tous les pixels qui matérialisent la phase privilégiée pour l'étude ; à tous les autres pixels est attribuée la valeur 0 ; dans ces conditions, l'image est binaire.

Un schéma du dispositif expérimental est donné dans la figure 3.1. La caméra chargée de la prise de vue, envoie au convertisseur analogique numérique un signal. Celui-ci est transformé par le convertisseur en une image dite numérique, qui est stockée. A chaque pixel de cette image numérique est associé un niveau de gris, codé sur i bits, variant de 0 à 2^{i-1}. Ce niveau de gris est proportionnel à l'intensité lumineuse du point (de l'image vidéo) que matérialise le pixel.

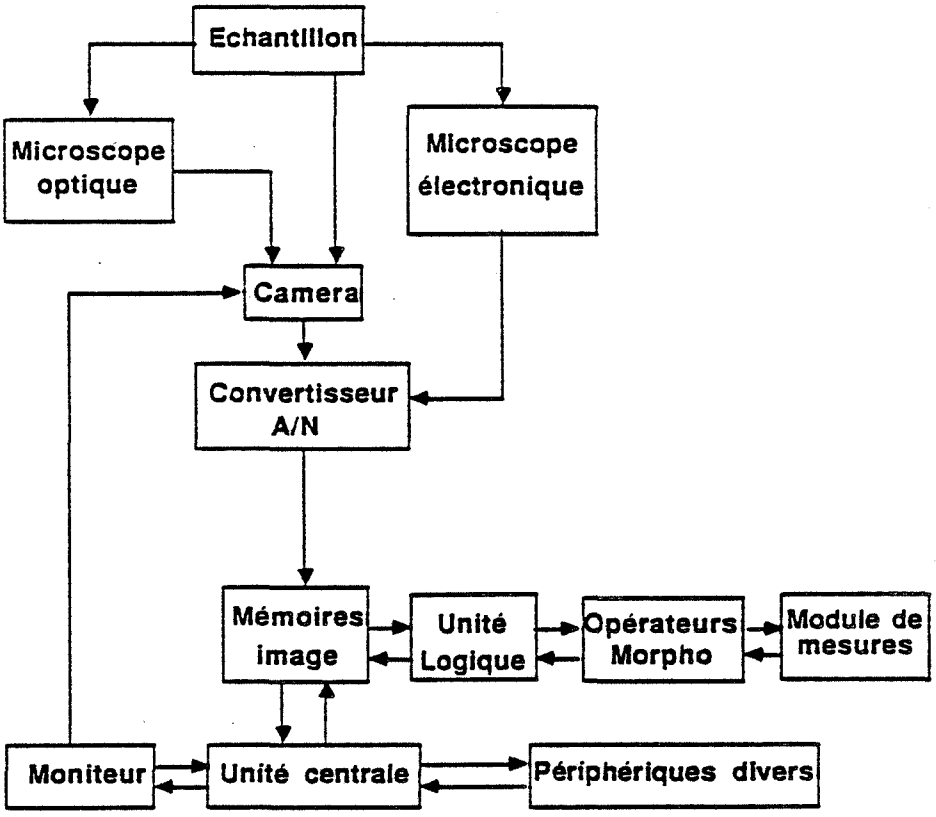


Figure 3.1. : Schéma de principe d'un analyseur automatique d'image (d'après Missiaen, p. 113).

Cette image numérique, riche en informations doit être traitée pour conduire à une image binaire, utilisée pour la mesure. Une justification du traitement de l'image sera illustrée par des exemples plus loin. Le traitement de l'image s'effectue en trois étapes :

- le traitement de l'image numérique,
- le seuillage ou passage d'une image numérique à une image binaire
- le traitement de l'image binaire.

Le traitement des images numériques et binaires fait intervenir, entre autres, des transformations morphologiques. Ces dernières sont, dans le cas des images binaires, des

transformations en tout ou rien. Pour cette raison, nous allons d'abord définir ces transformations puis nous détaillerons chacune des étapes conduisant à une image binaire.

2. Transformations en tout ou rien (Hit or Miss Transform)

Elles sont définies pour des images binaires uniquement. Même si elles transforment la totalité de l'image binaire retenue, elles ont pour but de comparer la phase privilégiée X à un autre objet de forme connue, appelé **élément structurant**, noté B (Coster et Chermant, 1985, p. 66).

a. L'élément structurant

Concrètement, si le réseau régulier de pixels choisi pour représenter une image binaire est hexagonal, un élément structurant, assimilé dans ce cas à un disque, sera parfaitement déterminé par les valeurs attribuées (1 ou 0) à son centre et aux plus proches voisins de ce dernier, répartis selon un hexagone. L'ensemble des plus proches voisins constitue le voisinage du centre. Ainsi :

$$\begin{matrix} & 0 & 1 & \\ x & & & 0 \\ & x & & \end{matrix} \qquad \text{et} \qquad \begin{matrix} & 1 & 1 & \\ x & & & x \\ & 0 & & \end{matrix}$$

sont deux exemples d'élément structurant dans lesquels les pixels représentés par x prennent indifféremment la valeur 1 ou 0.

b. La transformation en tout ou rien

Elle s'applique en tout point d'une image. Elle consiste à déplacer un élément structurant B de telle sorte que son centre passe par tous les pixels de l'image binaire. A chaque pixel, une question relative à l'intersection, la réunion ou l'inclusion de B avec ou dans X (phase privilégiée constituée de pixels dont la valeur est 1), est posée. Si la réponse est positive (respectivement négative), la valeur 1 (resp. 0) est attribuée au pixel (d'où le nom de transformation en tout ou rien).

Ainsi, une transformation en tout ou rien est caractérisée par un élément structurant et une question relative aux propriétés de deux ensembles : la phase privilégiée et l'élément structurant centré sur un pixel quelconque de l'image binaire.

Remarque : Ces transformations ont des propriétés spécifiques que nous ne rappellerons pas ici puisqu'inutiles à la compréhension de ce travail (Coster et Chermant, 1985, p. 66).

Ayant défini les transformations en tout ou rien, nous pouvons passer à l'étude concernant le traitement des images numérique et binaire et le seuillage. Par souci de clarté, nous commençons par le traitement d'une image binaire qui, sous certains aspects explicités par la suite, n'est qu'un cas particulier de l'image numérique.

3. Le traitement de l'image binaire

Il est réalisé grâce à deux classes de transformations.

a. Les transformations logiques

Elles s'effectuent entre deux images binaires ; elles utilisent les opérateurs logiques de l'étude des ensembles : l'intersection, la réunion, le complémentaire, la différence symétrique. Les ensembles comparés sont dans ce cas, les sous-ensembles de l'image binaire composés des pixels de valeur 1 (cf. annexe 4).

b. Les transformations morphologiques (cf. annexe 4)

Ce sont toutes des transformations en tout ou rien ; elles s'effectuent donc sur une image binaire seulement. Selon l'élément structurant B et la "question posée", elles se répertorient ainsi :

- l'érosion et la dilatation : si elles sont appliquées λ fois de façon consécutive à une image, ce sont des érosions ou des dilatations de pas λ. Combinées l'une avec l'autre, elles donnent lieu à une ouverture (érosion suivie d'une dilatation) ou à une fermeture (dilatation suivie d'une érosion) de pas λ si les opérations élémentaires ont été réitérées λ fois

- l'amincissement-l'épaississement permettent en jouant sur le choix de l'élément structurant, d'éliminer des points isolés, de ne retenir que le contour des objets, "d'ébarbuler" des objets, de définir différents types de "squelette" des objets

- la transformation conditionnelle transforme une phase X à l'aide d'un élément structurant B et conditionnellement à une autre phase Y dite **marqueur**. Elle rend possible les reconstructions.

Notations : Par la suite, nous serons amenés à utiliser les notations suivantes :

$E^B(X)$: érosion de X suivant l'élément structurant B
$D^B(X)$: dilatation de X suivant l'élément structurant B
$F^B(X)$: fermeture de X suivant l'élément structurant B
$O^B(X)$: ouverture de X suivant l'élément structurant B
$O_B^Y(X)$: ouverture de X suivant l'élément structurant B et conditionnellement à Y.

Les définitions, propriétés et effets de ces transformations sont clairement rapportés par Missiaen (1989, p. 179), Coster et Chermant (1985, p. 73) ainsi qu'en annexe 4.

4. Le traitement de l'image numérique

Les différentes transformations utilisées peuvent être répertoriées en deux catégories.

a. Les transformations mathématiques

Elles mettent en jeu deux images. Elles consistent à faire une opération arithmétique entre deux niveaux de gris attribués à deux pixels occupant la même position dans chaque image. Les plus utilisées sont l'addition et la soustraction.

b. Les transformations morphologiques

Les transformations morphologiques utilisées pour le traitement numérique sont répertoriées d'une façon analogue à celles utilisées pour le traitement d'une image binaire :

- l'érosion et la dilatation numériques (cf. annexe 4) pouvant conduire à des ouvertures et des fermetures numériques de pas λ ;
- l'amincissement et l'épaississement ;
- la transformation conditionnelle permet aussi la reconstruction d'image à l'aide d'un marqueur.

En pratique, les transformations issues des deux dernières catégories sont rarement utilisées car longues en durée et pas toujours très efficaces quant aux résultats escomptés. Par contre, deux transformations sont très souvent utilisées ; elles sont une combinaison de deux opérations "élémentaires", l'une étant arithmétique et l'autre morphologique :

- la transformation "gradient" peut être assimilée à la différence entre deux images numériques : l'érodée et la dilatée (toutes les deux de taille 1) de la phase X (cette dernière est matérialisée par les pixels à niveau de gris élevé) :
- la transformation "chapeau haut de forme" de taille λ appliquée à la phase X est l'image obtenue après avoir soustrait à la phase X son ouvert de taille λ variable.

Avant de passer à l'étude du seuillage, nous aimerions compléter ce paragraphe par deux remarques.

Remarque 1 : Nous n'avons parlé dans les deux cas traités que des transformations morphologiques, exception faite des transformations mathématiques ou logiques ; cependant, il en existe d'autres (Coster et Chermant, 1985, p. 336) non répertoriées ici puisque notre appareil de mesures n'en est pas doté.

Remarque 2 : Des informations concernant les effets obtenus, en pratique, lors de l'utilisation des opérations élémentaires sont rappelées en annexe 4.

5. Le seuillage

Cette opération consiste à attribuer la valeur 1 à tous les pixels de l'image numérique qui ont un niveau de gris compris entre deux valeurs i_1 et i_2 choisies par l'opérateur ; à tous les autres pixels est attribuée la valeur 0. L'image obtenue est binaire.

Les différents moyens utilisés pour mener à bien chacune de ces étapes étant explicités en annexe 4, nous sommes en mesure de disposer d'une image binaire correctement acquise, c'est-à-dire que l'ensemble des pixels de valeur 1 dans cette image représente bien la phase privilégiée. Nous pouvons donc passer à l'étape suivante : le principe des mesures sur une image.

V. Réalisation d'une mesure sur une image binaire

1. Principe

Les relations stéréologiques présentées dans le tableau 3.1. montrent que toutes les grandeurs métriques (V_V, A_A, etc...) sont évaluées à partir d'un paramètre topologique, c'est-à-dire à partir d'un dénombrement (de points, de segments ou de "sections"). Ce résultat est général.

Ainsi, **l'évaluation de tous les paramètres, métriques ou généraux, est déduite d'un dénombrement.**

2. Evaluation des paramètres topologiques

Avant de donner les résultats, définissons quelques termes : appelons N_P le nombre de pixels contenus dans une image binaire. Les pixels sont répartis régulièrement dans l'espace selon un réseau de droites ou trame. Prenons le cas d'une trame hexagonale (Figure 3.2.). Sur les 3 directions principales de l'hexagone, les points sont séparés les uns des autres d'une distance dL_1. La distance dL_2 sépare deux lignes horizontales du réseau et $dL_2 = \left(\sqrt{3}/2\right) dL_1$ (si la trame était carrée, nous aurions $dL_1 = dL_2$). De plus, à chaque pixel est associée une aire élémentaire $dA_2 = \left(\sqrt{3}/2\right) dL_1^2$ pour un réseau hexagonal.

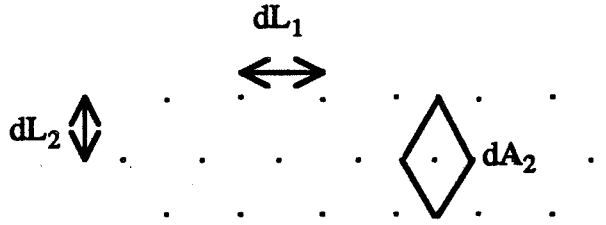


Figure 3.2. : Représentation d'une trame hexagonale.

Nous pouvons maintenant expliciter le calcul des différents paramètres topologiques, non rapportés à l'unité de l'espace dans lequel ils sont définis.

- <u>le nombre de points</u> : $N_0(X)$ est égal au nombre de pixels qui ont la valeur 1, quel que soit leur voisinage. Nous écrirons, dans le cas d'une trame hexagonale :

$$N_0(X) = N_0\left(x \begin{matrix} x \\ x \end{matrix} 1 \begin{matrix} x \\ x \end{matrix} x\right)$$

- <u>le nombre de connexité dans R^1</u> : $N_1(X)$ est égal au nombre de segments présents dans la phase privilégiée X, et ce dans une direction. Dans la direction horizontale, notée 0, nous aurons :

$$N_1(X, 0) = N_0\left(x \begin{matrix} x \\ x \end{matrix} 0 \begin{matrix} x \\ x \end{matrix} 1\right)$$

Afin d'obtenir une plus grande précision sur la valeur de N_1 (X), il est bon de le calculer dans les trois directions privilégiées d'une trame hexagonale et d'en faire une moyenne. Ainsi :

$$N_1(X) = \frac{N_0\left(x\,{}^{x}_{x}\,0\,{}^{x}_{x}\,1\right) + N_0\left(x\,{}^{x}_{x}\,0\,{}^{1}_{x}\,x\right) + N_0\left(x\,{}^{x}_{x}\,0\,{}^{x}_{1}\,x\right)}{3} \qquad (3.1.)$$

- <u>le nombre de connexité dans R^2</u> : N_2 (X). Serra (1982, p. 186) montre que le nombre de connexité N_2 (X, i) dans une direction i et dans R^2 est tel que :

$$N_2(X, i) = N\begin{pmatrix} 1 \\ 0\ 0 \end{pmatrix} - N\begin{pmatrix} 1\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}$$

où $N\begin{pmatrix} 1 \\ 0\ 0 \end{pmatrix}$ est le nombre de configurations $\begin{pmatrix} 1 \\ 0\ 0 \end{pmatrix}$, à savoir :

$$N\begin{pmatrix} 1 \\ 0\ 0 \end{pmatrix} = N_0\left(0\,{}^{1}_{x}\,0\,{}^{x}_{x}\,x\right) = N_0\left(x\,{}^{x}_{x}\,0\,{}^{1}_{x}\,0\right) = N\left(x\,{}^{x}_{0}\,1\,{}^{x}_{0}\,x\right)$$

Ici aussi, pour améliorer la précision des mesures, nous avons calculé N_2 (X) à partir de la moyenne de 3 grandeurs N_2 (X, 0), N_2 (X, 1) et N_2 (X, 2) obtenues en privilégiant chacune des directions principales d'une trame hexagonale. Ainsi :

$$N_2(X, 0) = N_0\left(x\,{}^{x}_{0}\,1\,{}^{x}_{0}\,x\right) - N_0\left(x\,{}^{1}_{x}\,0\,{}^{1}_{x}\,x\right)$$

$$N_2(X, 1) = N_0\left(0\,{}^{0}_{x}\,1\,{}^{x}_{x}\,x\right) - N_0\left(x\,{}^{x}_{x}\,0\,{}^{x}_{1}\,1\right)$$

$$N_2(X, 2) = N_0\left(x\,{}^{x}_{x}\,1\,{}^{0}_{x}\,0\right) - N_0\left(1\,{}^{x}_{1}\,0\,{}^{x}_{x}\,x\right)$$

et :

$$N_2(X) = \frac{1}{3}\left\{N_2(X, 0) + N_2(X, 1) + N_2(X, 2)\right\} \qquad (3.2.)$$

Remarque : Il est facile et opportun de remarquer que les dénombrements consistent en réalité à compter le nombre de pixels ayant une valeur 1, quel que soit leur entourage, sur une image obtenue après avoir fait subir à l'image analysée une transformée en tout ou rien, par un élément structurant. Cet élément varie selon le paramètre topologique recherché, et la question "tout ou rien" est relative à l'égalité entre l'élément et l'environnement du point.

Par la suite, si la question attribuée à une transformation en tout ou rien n'est pas précisée, il s'agit de l'égalité.

3. Correction de bords

Nous avons vu précédemment (§ 3.II.1.) qu'en analyse locale, les paramètres, qu'ils soient généraux ou stéréologiques, doivent être ramenés à l'unité de l'espace dans lequel ils sont définis. Or, l'évaluation des différents paramètres topologiques présentés précédemment, à l'exception de N_0, si elle est réalisée sur tous les pixels de l'image binaire, conduit à une valeur erronée du paramètre. En effet, les pixels situés sur les bords de l'image binaire n'ont pas un voisinage parfaitement connu : le dénombrement ne peut donc pas être correct. Pour cette raison, les paramètres topologiques doivent être évalués sur un domaine restreint de l'image, à savoir l'image initiale (avec ses N_P pixels) diminuée des pixels se situant sur le contour (ou une partie du contour de l'image.

a. Cas particulier

Essayons de préciser davantage en étudiant un cas particulier : si Z est l'image binaire où tous les pixels ont la valeur 1 et I_b est l'image binaire où seuls les pixels représentant la phase ont la valeur 1, la valeur de N_1 (X, 0) par exemple est non erronée sur l'image résultant de l'intersection de I_b' et de l'érodée de Z, selon l'élément structurant $\begin{pmatrix} x & 1 & x \\ x & 1 & x \end{pmatrix}$, où I_b' est la transformée en tout ou rien de I_b selon l'élément structuant $\begin{pmatrix} x & 0 & x \\ x & 1 & x \end{pmatrix}$.

Remarque : Il est clair que l'opération décrite précédemment n'est en aucun cas équivalente à l'évaluation du nombre de connexité N_1 (X, 0) sur l'image obtenue après l'intersection de I_b avec l'érodée de Z selon l'élément structurant $\begin{pmatrix} x & 1 & x \\ x & 1 & x \end{pmatrix}$.

b. Cas général

Le résultat précédent est général. Ainsi, le nombre $N_0\begin{pmatrix} x & a & x \\ x & c & b \end{pmatrix}$ de pixels de l'image binaire I_b (privilégiant la phase X) qui ont une configuration déterminée par l'élément structurant $B = \begin{pmatrix} x & a & x \\ x & c & b \end{pmatrix}$ où a, b, c prennent les valeurs 0 ou 1, est non biaisé s'il est évalué sur l'image binaire obtenue en faisant l'intersection de la transformée en tout ou rien de I_b par B et de l'érodée de Z par $B^c = \begin{pmatrix} x & 1 & x \\ x & 1 & 1 \end{pmatrix}$.

Nous dirons dans ces conditions que $N_0\begin{pmatrix} x & a & x \\ x & c & b \end{pmatrix}$ est évalué sans biais sur le masque de mesure $Z' = E^{B^c}(Z)$.

Remarque : Ceci est en fait une forme explicite du théorème du masque appliquée au cas particulier d'une analyse digitale. Une expression plus générale de ce théorème est proposée par Missiaen (p. 190).

Dans la pratique, si le paramètre topologique recherché nécessite, comme c'est le cas pour N_2 (X) et N_1 (X), le comptage, sur l'image I_b, de k configurations différentes, chacune d'elles étant caractérisée par un élément structurant B_i, il sera évalué sans biais sur le masque de mesure :

$$Z' = \bigcap_{i=1}^{k} E^{B_i^c}(Z)$$

Remarque : La correction de bords présentée ici est de loin, la plus utilisée. Elle s'applique dans tous les cas où l'image est traitée globalement, c'est-à-dire sans privilégier (par rapport au traitement) une zone de l'image. Nous dirons, dans ces conditions, que l'analyse est texturale. Il existe des cas où l'étude porte sur chaque objet (supposé disjoint) de la phase ; il s'agit alors d'une analyse individuelle des particules : c'est le cas en particulier, des granulométries obtenues par les méthodes de Miles (Missiaen, p. 123) ou de Saltykov (cf. annexe 5). Dans ces conditions, nous utiliserons la correction de bords dite de Lantuejoul et présentée en annexe 5.

Nous sommes maintenant en mesure d'évaluer, sans biais, les valeurs des paramètres topologiques quels qu'ils soient. Nous avons vu par ailleurs (§ 3.II.1.) qu'en analyse locale, ces paramètres n'étaient significatifs que s'ils étaient rapportés à l'unité d'espace dans lequel ils ont été évalués : N_2 (X) et N_1 (X) doivent être rapportés à l'unité de surface et de longueur respectivement. Pour ce faire, il suffit de les diviser par la surface totale ou la longueur totale balayée par l'ensemble des pixels qui sont compris dans Z'. Ces grandeurs dépendent de la trame utilisée et sont des fonctions de N_P, dL_1, dL_2 et dA_2 non explicitées ici.

Jusqu'à présent, nous avons vu comment à partir d'une seule image I_b, évaluer, sans biais, un paramètre topologique. Or, nous avons vu (§ 3.I.2.) qu'afin de minimiser les erreurs de mesure, il était conseillé d'analyser plusieurs images extraites d'un même échantillon. Dans ces conditions, les calculs se compliquent légèrement : nous allons donc les expliciter.

4. Calcul des grandeurs moyennes et des erreurs

En pratique, nous souhaitons caractériser un échantillon par une grandeur g (g peut être un paramètre métrique mais aussi topologique ou "général"). Nous disposons de n_c images binaires, extraites de cet échantillon, et qui ne se recouvrent pas. Sur chacune de ces images, la grandeur choisie pour caractériser l'échantillon peut être évaluée, sans biais, selon la technique présentée au paragraphe précédent et conduire ainsi à une valeur g_i.

Nous considérons alors que :

$$\bar{g} = \frac{1}{n_c} \sum_{i=1}^{n_c} g_i \qquad (3.3.)$$

est un estimateur non biaisé de la grandeur g caractérisant l'échantillon.

Nous souhaitons maintenant évaluer l'erreur faite sur la mesure de $\bar{g}$. Pour cela, nous devons calculer la variance de $\bar{g}$:

$$\sigma^2(\bar{g}) = \sigma^2\left[\frac{1}{n_c}\sum_{i=1}^{n_c} g_i\right] \qquad (3.4.)$$

Les propriétés de la variance permettent d'écrire que :

$$\sigma^2(\bar{g}) = \frac{1}{n_c^2}\sum_{i=1}^{n_c}\sigma^2(g_i) \qquad (3.5.)$$

Sachant qu'aucune des images ne se recouvrent, nous pouvons supposer que les mesures faites sur chacune des images sont indépendantes et que dans ces conditions la variance de g_i est identique d'une image à l'autre. L'équation précédente s'écrit alors :

$$\sigma^2(\bar{g}) = \frac{1}{n_c}\sigma^2(g_i) \qquad (3.6.)$$

Or :

$$\sigma^2(g_i) = \frac{1}{(n_c - 1)}\sum_{i=1}^{n_c}(g_i - \bar{g})^2 \qquad (3.7.)$$

Ainsi, l'erreur effectuée sur la mesure de $\bar{g}$ est :

$$\sigma(\bar{g}) = \frac{1}{\sqrt{n_c(n_c - 1)}}\sum_{i=1}^{n_c}(g_i - \bar{g})^2 \qquad (3.8.)$$

Remarque : Pour nos analyses, nous avons utilisé les lois classiques de la statistique. Les lois de la géostatistique (Coster et Chermant, p. 380) sont parfois utilisées pour ce genre de mesures.

ANNEXE 4 :

PRINCIPALES OPERATIONS UTILISEES EN ANALYSE D'IMAGE

Dans cette partie, nous allons expliciter les différentes transformations utilisées dans le traitement des images, en reprenant la même classification que celle proposée en annexe 3.

I. Traitement binaire

1. Opérations logiques

Nous allons simplement illustrer les différentes opérations possibles par des exemples. La figure 4.1. représente l'intersection (d), la réunion (c), la différence (f) de deux images (a) et (b) ainsi que le complémentaire de l'image (a) conditionnellement à Z (e).

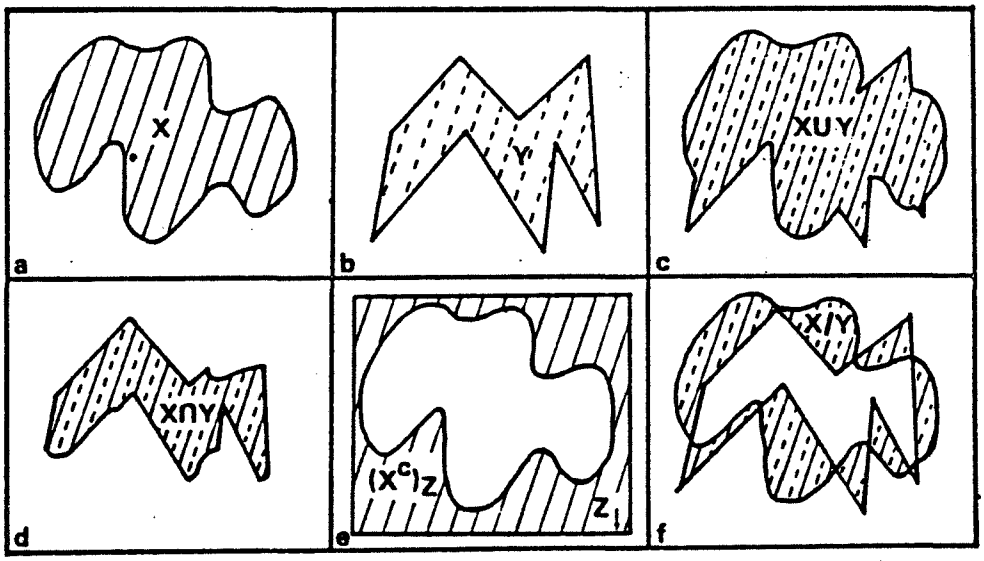


Figure 4.1. : Différents exemples d'opérations logiques réalisées sur des images binaires (d'après Coster et Chermant, 1985, p. 67).

2. Transformations morphologiques

Nous ne les définirons pas toutes (cf. Coster et Chermant, 1985 ; Missiaen, 1989) ; nous nous contenterons d'illustrer leurs effets par des exemples.

a. L'érosion et la dilatation

Si à l'intérieur d'une image I_b composée de pixels notés x, la phase X est privilégiée, nous dirons que l'érodé de X selon l'élément structurant B est la transformée en tout ou rien de X par B, à savoir l'ensemble E^B (X) tel que :

$$E^B(X) = \{x \in I_b / B_x \subset X\}$$

Dans les mêmes conditions, le dilaté de X selon l'élément structurant B est l'ensemble D^B (X) tel que :

$$D^B(X) = \{x \in I_b / B_x \subset X \neq \emptyset\}$$

La notation B_x signifie que le centre de l'élément structurant B est positionné sur le pixel x.

Certains éléments structurants sont remarquables :

$$B = \begin{pmatrix} 1 & 1 & 1 \\ 1 & 1 & 1 \end{pmatrix} \text{ est noté (H)} \qquad B = \begin{pmatrix} x & & x \\ & 1 & \\ x & & x \end{pmatrix} \text{ est noté (1)}$$

Dans le cas d'une érosion selon l'élément structurant (1), nous parlerons d'une érosion linéaire selon la direction privilégiée par l'élément (1) (Figure 4.2.).

Dans le cas d'une dilatation selon l'élément structurant (H), nous parlerons d'une dilatation hexagonale (Figure 4.3.).

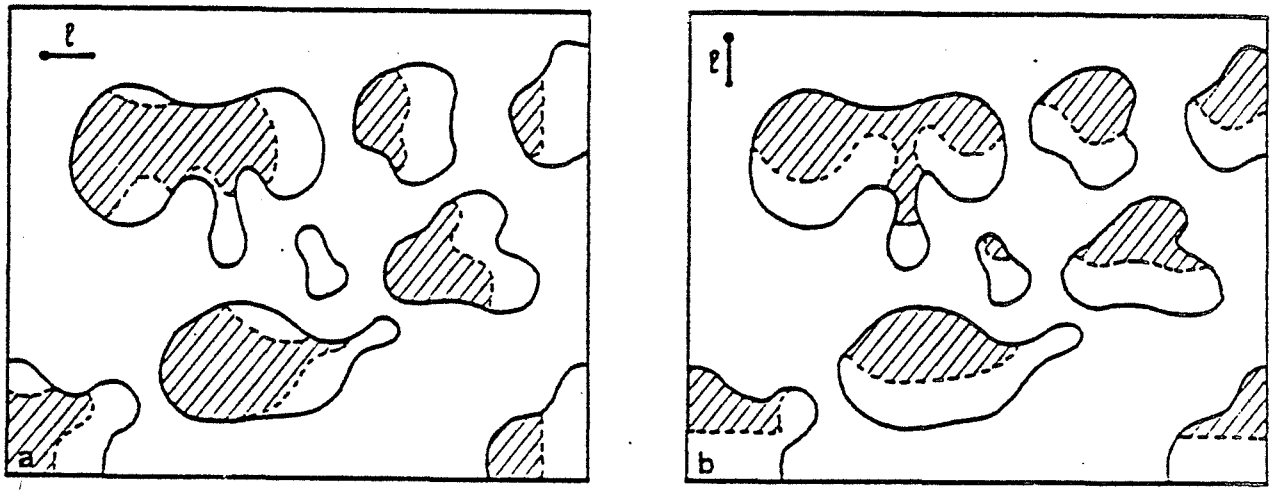


Figure 4.2. : Erosion linéaire selon deux directions différentes (d'après Coster et Chermant, p. 86).

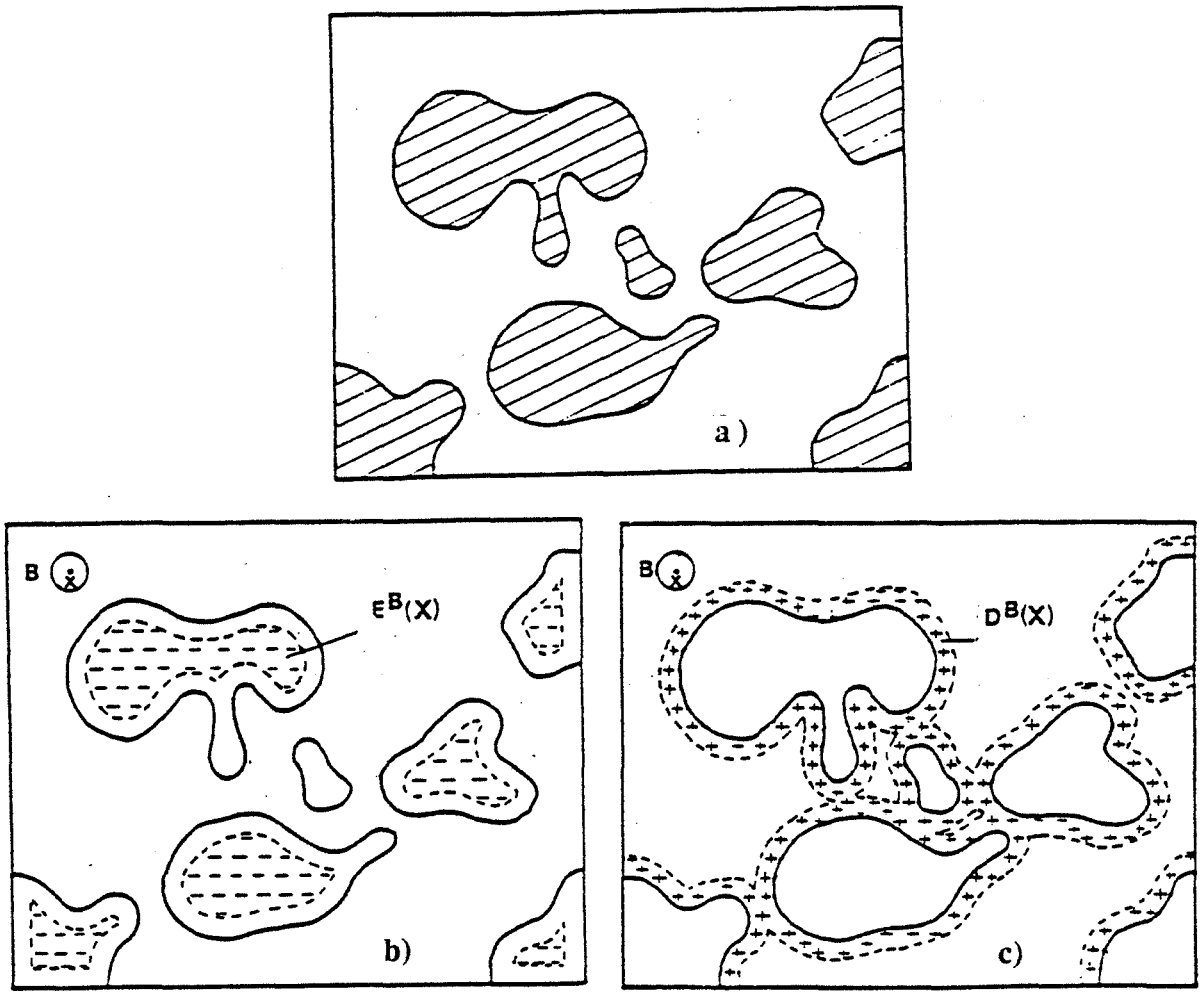


Figure 4.3. : Erosion (b) et dilatation (c) par un élément structurant B des objets de la figure a (d'après Coster et Chermant, p. 74-75).

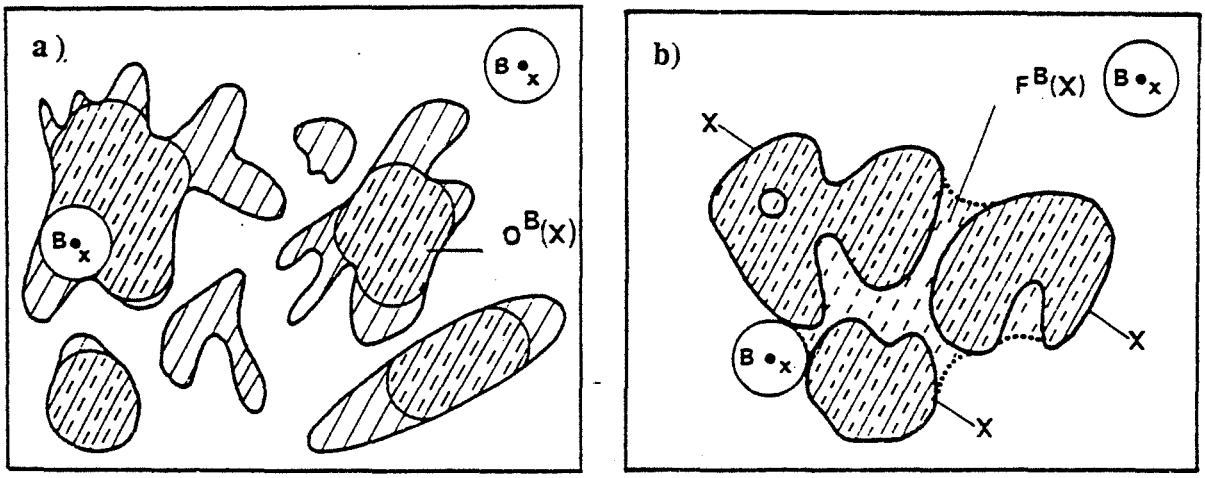


Figure 4.4. : Ouverture (a) et fermeture (b) par un élément structurant B d'un ensemble d'objets (d'après Coster et Chermant, p. 84).

b. L'ouverture et la fermeture

Elles sont illustrées par la figure 4.4. Nous dirons simplement que l'ouverture adoucit les contours (d'autant plus si son pas est grand) alors que la fermeture comble les espaces entre les objets.

c. L'amincissement et l'épaississement

Ils sont à l'origine de différents squelettes illustrés par la figure 4.5.

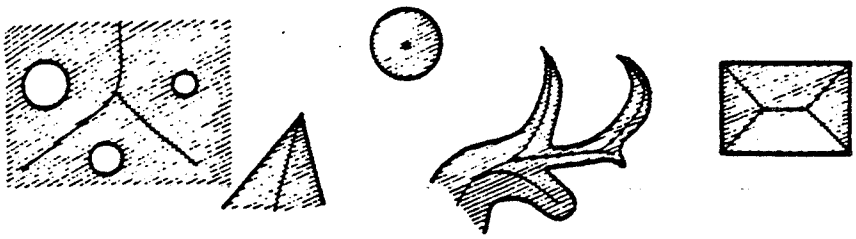


Figure 4.5. : Exemples de squelette (d'après Missiaen, p. 186).

d. La transformation conditionnelle

Elle est illustrée dans le cas d'une reconstruction d'objets par dilatation (Figure 4.6.).

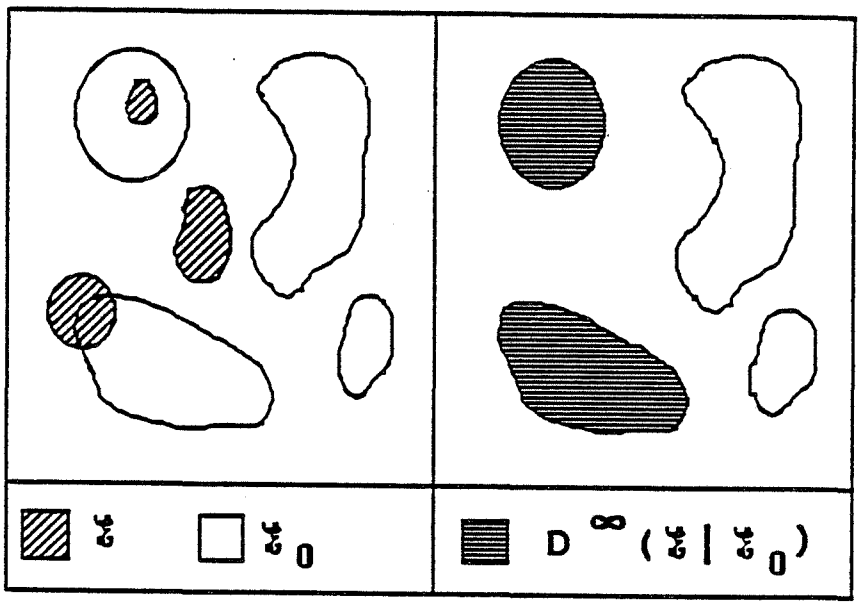


Figure 4.6. : Reconstruction de l'ensemble $\mathfrak{X}_0$ à partir du marqueur $\mathfrak{X}$ (d'après Missiaen, p. 187).

II. Traitement numérique

Il est très difficile d'illustrer par des exemples les effets causés par les différentes opérations utilisées pour ce traitement. Seule l'expérience prévaut. Nous ne dirons que quelques notes concernant quelques cas particuliers.

1. Opérations morphologiques élémentaires

A chaque pixel de l'image numérique est associée une fonction d'état f (u) égale au niveau de gris du pixel : les valeurs de cette fonction sont comprises entre 0 et 2^{i-1} (cf. annexe 3) lorsque l'image numérique est codée sur i bits. Dans ces conditions, l'élément structurant B est toujours caractérisé par son centre et son voisinage et nous pouvons définir l'érosion et la dilatation numériques de la fonction d'état f (et non plus de la phase objet comme dans le cas d'une image binaire) par :

$$E^B(f(x)) = \mathrm{Inf}[f(u)]_{u \in B}$$

et :

$$D^B(f(x)) = \mathrm{Sup}[f(u)]_{u \in B}$$

où u décrit les différentes positions privilégiées de l'élément B.

Notons que ces transformations conduisent à l'érosion et à la dilatation binaires dans le cas où i = 2.

2. Le gradient

Il ne retient de l'image traitée que les zones de contraste élevé, c'est-à-dire où l'intensité lumineuse (donc le niveau de gris) passe, de façon brutale (sur un domaine restreint), d'une valeur élevée à une valeur faible (ou vice-versa).

3. Le chapeau haut de forme de taille λ

Il permet de sélectionner sur l'image traitée, uniquement les zones très lumineuses ou très sombres qui ont une taille inférieure à λ.

Prises isolément, ces deux dernières opérations ne présentent pas grand intérêt. Elles ne sont utiles que combinées à d'autres transformations numériques, très souvent l'addition ou la soustraction.

III. Remarque d'ordre pratique

Toutes les opérations décrites ci-dessus sont utilisables pour l'acquisition des images. Cependant, sous certaines conditions d'utilisation, elles peuvent être une source d'erreurs au niveau des mesures faites par la suite sur les images binaires.

Illustrons ce propos par deux exemples issus du même type d'échantillon analysé, à savoir un ensemble de grains (sombres) dispersés dans une résine (claire).

Si le pas utilisé pour effectuer une érosion (dilatation, ouverture, fermeture) numérique ou binaire en privilégiant la phase granulaire, est trop important par rapport à la taille des disques représentant les grains, ces disques seront déformés suivant un hexagone (si la trame est hexagonale) : celui-ci n'est plus représentatif de la réalité et conduit à des mesures erronées.

Si, par ailleurs, l'image numérique est telle que la résine soit entachée d'impuretés à faible niveau de gris (comme les grains) et de taille très inférieure à celle des grains, ces impuretés doivent être éliminées. Cette opération est possible grâce à une transformation numérique, soit une soustraction à l'image initiale de son chapeau de forme d'une taille très légèrement supérieure à celle des impuretés, soit par une fermeture d'un pas convenablement choisi. Les deux solutions sont possibles mais la première est préférable car elle ne modifie pas le contour des grains.

ANNEXE 5 :

DISTRIBUTION GRANULOMETRIQUE : METHODE DE SALTYKOV

I. Principe

Cette méthode s'applique non seulement aux systèmes polydispersés de sphères mais aussi aux particules convexes.

Nous ne décrirons la méthode que dans le cas de particules sphériques : pour le cas général, le lecteur devra consulter les travaux d'Underwood (p. 123).

Le but est d'obtenir, à partir d'une section de l'empilement, la distribution numérique des diamètres D_j des sphères, c'est-à-dire le nombre de particules N_V (X) (par unité de volume) qui ont un diamètre D_j (la phase X est ici la phase granulaire : pour alléger les notations, elle sera omise par la suite).

La section utilisée pour le calcul est en fait composée de disques disjoints de rayons R_i et de surface S_i. Soit :

N_{A_i} : le nombre de disques de rayon R_i par unité de surface
N_A : le nombre de disques par unité de surface.

Si l'empilement étudié est constitué de sphères identiques (de même diamètre D_p), Underwood montre (p. 85) que :

$$N_V = \frac{N_A}{D_p} = \frac{\sum_{i=0}^{i_{max}} N_{A_i}}{D_p} \qquad (5.1.)$$

En transposant cette expression au cas d'un ensemble de sphères de diamètre variable, il obtient :

$$N_{V_j} = \frac{\sum_{i=0}^{j} N_{A_{ij}}}{D_j} \qquad (5.2.)$$

où $N_{A_{i,j}}$ est le nombre, par unité de surface, de disques de rayon R_i résultant de la section de la particule de diamètre D_j.

En effet, une sphère de diamètre D_j ne peut conduire, après avoir été sectionnée, qu'à des disques de diamètre inférieur. D'autre part, la probabilité $P_{i,j}$ qu'a une sphère de diamètre D_j d'être coupée par un disque de rayon R_i est égale au rapport du nombre de disques de rayon R_i qui coupent la sphère de diamètre D_j et du nombre de disques (quelle que soit leur taille) qui coupent la sphère de diamètre D_j.

En ramenant chacun de ces nombres à l'unité de surface, $P_{i,j}$ s'écrit :

$$P_{i,j} = \frac{N_{A_{ij}}}{\sum_{i=0}^{i} N_{A_{ij}}} \qquad (5.3.)$$

A l'aide de l'équation (5.2.), nous obtenons :

$$P_{i,j} = \frac{N_{A_{ij}}}{D_j N_{V_j}} \qquad (5.4.)$$

Dans cette expression, aucun des paramètres n'est accessible par la mesure. Toutefois, Underwood montre (p. 112) que la probabilité qu'a une sphère d'être coupée par un plan situé dans une région d'épaisseur $h_i - h_{i-1}$ (Figure 5.1.) est :

$$P_{i,j} = \frac{h_{i-1} - h_i}{R_j} \qquad (5.5.)$$

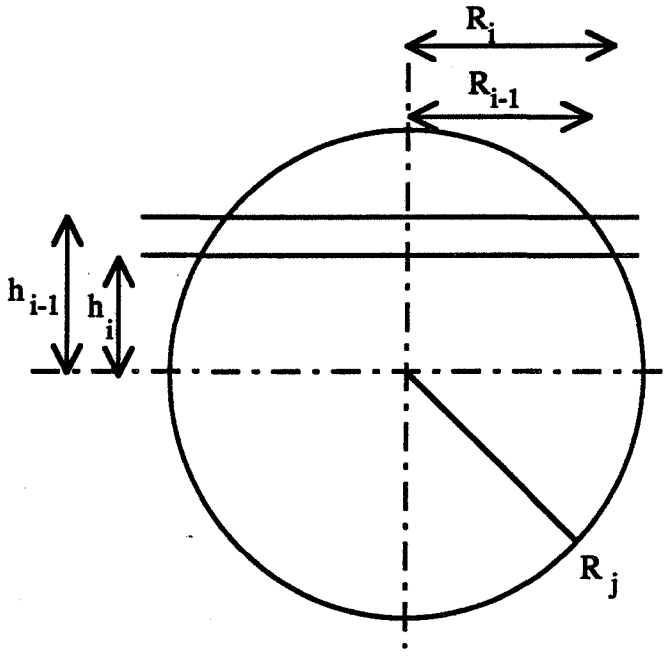


Figure 5.1. : Section par un plan d'une sphère de rayon R_j.

Dans ces conditions, et avec les notations de la figure 5.1., nous obtenons aisément :

$$P_{i,j} = \frac{1}{R_j}\left[\sqrt{(R_j)^2 - (R_{i-1})^2} - \sqrt{(R_j)^2 - (R_i)^2}\right] \qquad (5.6.)$$

Connaissant $P_{i,j}$, l'équation (5.4.) s'écrit :

$$N_{A_{ij}} = P_{i,j} D_j N_{V_j} \qquad (5.7.)$$

dans laquelle se trouvent deux inconnues $N_{A_{i,j}}$ et N_{V_j}.

Par contre, nous avons accès, en analyse d'image, à N_{A_i} (cf. annexe 3), or :

$$N_{A_i} = \sum_{j=i}^{j_{max}} N_{A_{ij}} \qquad (5.8.)$$

D'où :

$$N_{A_i} = \sum_{j=i}^{j_{max}} P_{i,j} D_j N_{V_j} \qquad (5.9.)$$

Cette expression nous conduit à N_{V_j} moyennant une inversion de matrice ou une résolution du système d'équations par récurrence. En pratique, cette deuxième solution a été utilisée en opérant la récurrence à partir de j_{max}.

II. Mise en place de la méthode

1. Procédure générale

Nous disposons d'une image binaire I_b dans laquelle la phase granulaire est privilégiée. Cette dernière est composée d'objets disjoints et circulaires assimilables à des disques. Une combinaison appropriée des opérations de morphologie permet de sélectionner un à un chacun de ces objets.

N_{A_i} est le nombre de disques par unité de surface qui ont un rayon compris entre R_i et R_{i+1} donc une surface comprise entre $S_i = \pi R_i^2$ et $S_{i+1} = \pi R_{i+1}^2$. Pour une valeur de i donnée, chaque objet K_k est isolé ; sa surface S_k est calculée selon le procédé classique :

$$S_k = N_0 \left(x \underset{x}{\overset{x}{1}} \underset{x}{\overset{x}{x}} \right) dA_2$$

Lorsque S_k est comprise entre S_i et S_{i+1}, le nombre N_{A_i} de disques de rayon R_i est incrémenté de la valeur (1/A (Z)) si aucune correction de bords n'est effectuée. Si S_k n'est pas comprise entre S_i et S_{i+1}, nous passons directement à l'objet suivant. Cette opération est réitérée jusqu'à ce que d'une part tous les objets de l'image aient été étudiés et que d'autre part, toutes les valeurs de i telles que R_i varient de 0 à R_{max} choisi par l'expérimentateur, aient été envisagées.

Avec les mesures de N_{A_i} ainsi obtenues, nous pouvons établir, selon la méthode indiquée dans le paragraphe précédent, la distribution de taille des particules N_{V_j} et en déduire le diamètre moyen pondéré en nombre $\overline{D}_p$ et l'écart type de la distribution selon les équations classiques de la statistique.

2. Correction de bords

La correction de bords utilisée pour une analyse individuelle de ce type est celle dite de Lantuejoul (rappelée par Missiaen, p. 123). Nous allons brièvement la décrire en l'appliquant à notre cas particulier de la mesure de N_{A_i} obtenue pour des raisons déjà évoquées à partir de n_c images I_{b_i}.

Elle consiste tout d'abord à éliminer tous les objets qui touchent le bord de chaque image et à dire ensuite que :

$$N_{A_i} = A\left(\left[E^Z(\Sigma)\right] \sum_{\substack{K_k \subset \mathfrak{D} \\ S_i < S_k < S_{i+1}}} \left(\frac{1}{n_c A\left[E^{K_k}(Z)\right]} \right) \right) \qquad (5.10.)$$

avec Σ : la section totale dans laquelle il est possible de prélever des images (Figure 5.2.)

$$\mathfrak{D} = \bigcup_{i=1}^{n_c} I_{b_i}$$

$A\,(E^Z\,(\Sigma))$: l'aire de l'érodée par Z de la section Σ

$A\,[E^{K_k}\,(Z)]$: l'aire de l'érodée par l'objet K_k du masque Z. Nous expliciterons par la suite cette grandeur.

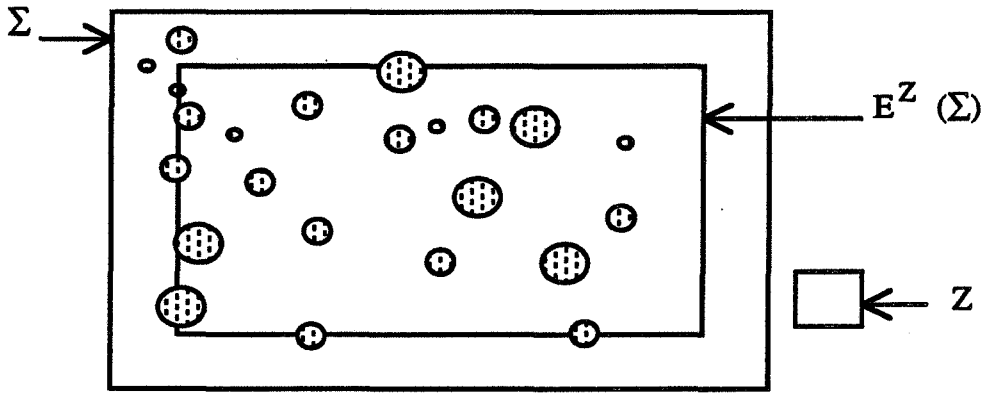


Figure 5.2. : Représentation de la section Σ analysée à l'intérieur de laquelle les images I_{b_i} sont prélevées.

En supposant de plus que la taille de Z est petite devant la section Σ, nous obtenons :

$$N_{A_i} = \frac{1}{n_c} \sum_{\substack{K_k \subset D \\ S_i < S_k < S_{i+1}}} \frac{1}{A\left[E^{K_k}(Z)\right]} \qquad (5.11.)$$

Dans le cas où les images sont des rectangles de longueur L_H et de largeur L_V, Lantuejoul a établi que :

$$A\,[E^K(Z)] = (L_H - D_H(K))\,(L_V - D_V(K)) \qquad (5.12.)$$

où $D_H(K)$ et $D_V(K)$ sont les diamètres de Ferret horizontal et vertical de l'objet K.

Ces grandeurs, explicitées dans le cas de particules convexes sur la figure 5.3. sont directement accessibles par l'appareil de mesures dont nous disposons.

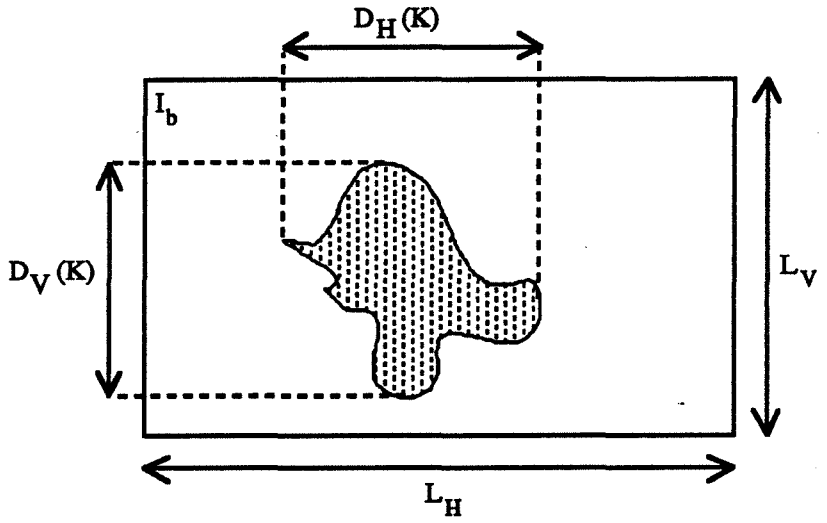


Figure 5.3. : Représentation des diamètres de Ferret horizontal et vertical d'un objet K convexe contenu dans une image I_b.

Des informations sur les définitions de ces diamètres de Ferret dans un cas général sont données par Coster.

III. Résultats expérimentaux

Cette méthode a été appliquée pour la caractérisation de la granulométrie des billes utilisées pour réaliser les différents échantillons consolidés. Les résultats sont présentés sur la figure 5.4. Ils ont été évalués, pour des diamètres variant de 0 à 100 µm avec un pas de 5 µm si les billes analysées sont de diamètre D_{p_1} et de 0 à 400 µm avec un pas de 10 µm si les billes analysées sont de diamètre D_{p_2} (cf. § B.II.2.).

La distribution granulométrique pondérée en nombre (Figure 5.4.a.) des billes qui ont un diamètre D_{p_1} compris entre 50 et 62 µm est très étroite (l'écart type est de 6 µm) et centrée autour d'une valeur moyenne égale à 55 µm.

La distribution granulométrique pondérée en nombre (Figure 5.4.b.) des billes de diamètre D_{p_2} compris entre 290 et 320 µm montre qu'il existe dans ce lot des particules de diamètre inférieur à 290 µm et supérieur à 100 µm d'une part et des petites particules de l'ordre de 20 µm d'autre part. Le diamètre moyen est en conséquence plus faible que celui attendu : il est de 280 µm, et, l'écart type de la distribution est très élevé : de l'ordre de 80 µm.

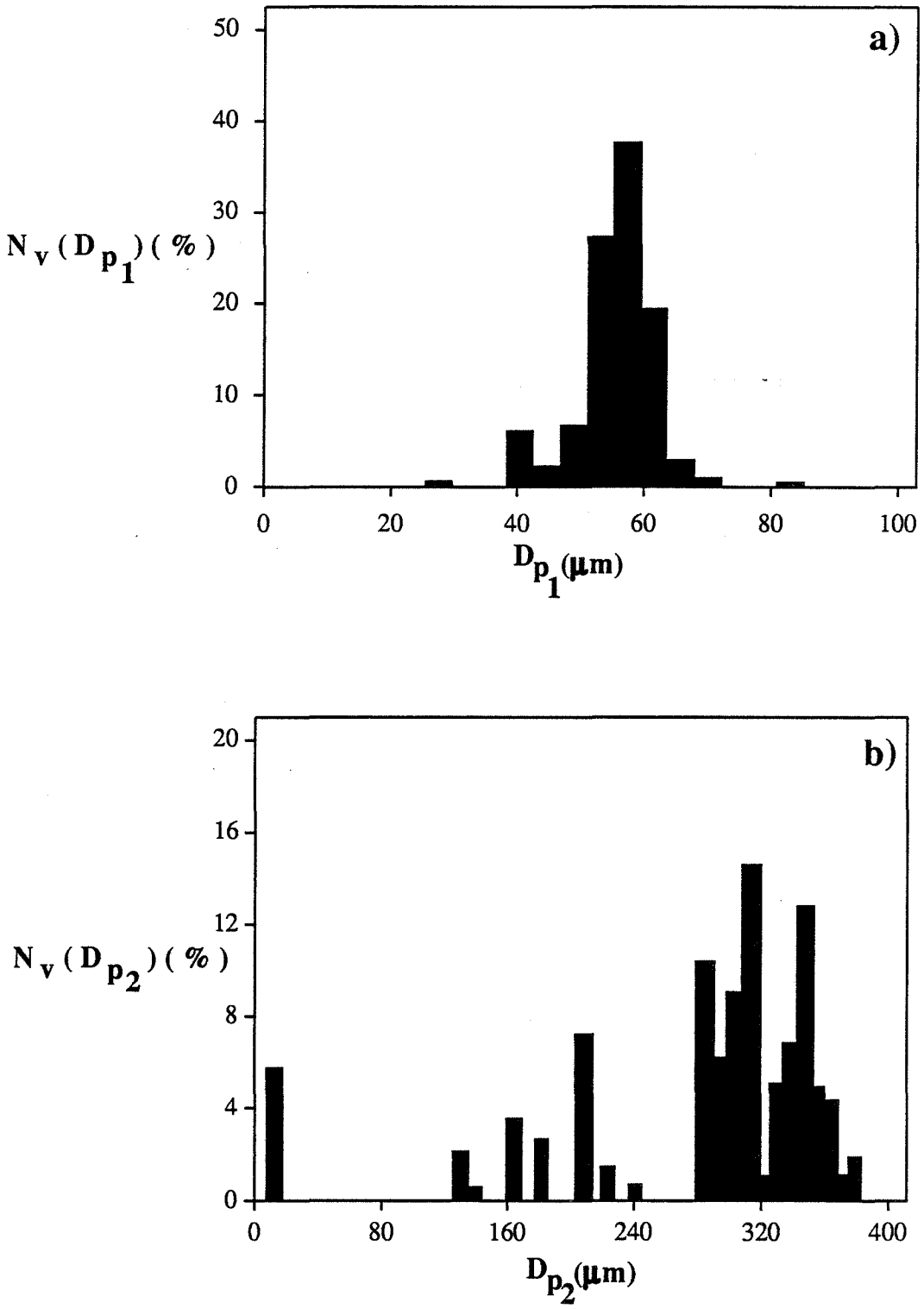


Figure 5.4. : Distribution granulométrique pondérée en nombre des billes de verre de diamètre D_{p_1} (a) et D_{p_2} (b).

ANNEXE 6 :

CONDITIONS EXPERIMENTALES DE L'ACTION DE L'ACIDE FLUORHYDRIQUE SUR LES BILLES DE VERRE

Le but de cette réaction est d'obtenir un contraste lumineux entre la phase granulaire, sensible à l'acide, et la phase poreuse matérialisée par la résine. La composition chimique et plus précisément la quantité de silice présente dans les billes, étant fonction de la taille des billes (cf. § D.I.2.), le protocole opératoire retenu pour atteindre ce but est différent selon la taille des billes utilisées.

I. Cas des billes de diamètre D_{p_2} ($290 < D_{p_2} < 320$ µm)

Dans ce cas, la réaction se fait en mettant la surface polie au contact de l'acide fluorhydrique sous forme gazeuse. Cette opération est réalisée en plaçant la surface polie au-dessus d'un flacon d'une solution d'acide fluorhydrique à 40 % et ce pendant une durée d'une heure environ (ou plus si c'est nécessaire). L'échantillon est ensuite rincé à l'eau abondamment puis à l'alcool et séché. Sous microscope, la phase granulaire paraît sombre devant la résine : la surface du verre est dépolie, recouverte de petites aspérités ; la surface de la résine n'a pas changé d'aspect. L'acquisition des images peut être effectuée (cf. figures C.II.4. et C.II.5.).

Notons par ailleurs, qu'aucune modification de la surface n'apparaît au cours du temps. De plus, une opération de polissage effectuée avec des particules abrasives de taille inférieure à 1 µm, dans les mêmes conditions que celles rapportées dans le tableau (C.II.1.), mais d'une durée d'une dizaine de secondes ne modifie en rien l'état de surface.

II. Cas des particules de diamètre D_{p_1} ($50 < D_{p_1} < 62$ µm)

Dans ce cas, la réaction se produit par mise en contact de la surface polie et de l'acide fluorhydrique sous forme liquide (solution d'acide fluorhydrique à 40 %).

En pratique, l'échantillon poli est maintenu (en l'agitant à l'aide d'une pince) dans une solution d'acide fluorhydrique à 40 % pendant 30 secondes puis immergé dans une solution tampon (pH = 11), rincé abondamment à l'eau et à l'alcool et séché (à l'aide d'un sèche-cheveux). Lors du séchage apparaît une pellicule blanche sur la surface polie (cette couche apparaît également si l'échantillon sèche à l'air ambiant). Une observation sous microscope montre une surface complètement transformée présentant de nombreux reliefs et sur laquelle les particules ne sont plus discernables mais noyées sous une pellicule blanche. Cette dernière peut être éliminée soit par traitement aux ultra-sons, soit par polissage avec des particules abrasives de taille inférieure au micromètre et pendant une durée d'une dizaine de secondes. Pour des raisons pratiques, nous avons retenu la première solution.

Quelle que soit la méthode choisie, le résultat est identique : la phase granulaire est globalement plus sombre que la résine mais présente également des zones aussi claires que la résine. Cette inhomogénéité de l'aspect de la phase granulaire qui complique notablement l'acquisition des images (cf. figure C.II.4.) n'a pu être éliminée.

Des tentatives d'amélioration de ce procédé ont été réalisées.

La première consiste à procéder exactement de la même façon que précédemment en prolongeant simplement la durée de la réaction entre l'acide et la silice. Elle n'a pas abouti puisque, comme le laissent entendre Gilard et Dubul (1937, p. 198), l'action de l'acide

fluorhydrique sur la silice conduit à la formation d'une couche protectrice empêchant la réaction de se poursuivre.

La seconde consiste à faire réagir, sur la silice, l'acide fluorhydrique sous sa forme gazeuse, dans les mêmes conditions que celles utilisées dans le cas des billes de diamètre D_{p_2} mais pendant des durées plus longues. Au bout de quelques heures (4 environ), le contraste obtenu n'est pas suffisamment marqué. Au bout de quelques jours (1 semaine environ) le contraste obtenu offre de très bons résultats. Mais, le polissage d'un tel échantillon avec des particules abrasives de taille inférieure à 1 µm pendant une dizaine de secondes conduit à la disparition totale de ce contraste. Les conditions d'apparition de ce contraste n'ont pas toujours été reproductibles. Aussi cette méthode, même si elle conduit parfois à de meilleurs résultats que celle choisie, n'a pu être retenue.

ECOLE NATIONALE SUPERIEURE
DES MINES DE SAINT-ETIENNE

N° d'ordre : 60 CD
Année : 1991

Nom : Claudine JACQUET

Titre : **CARACTERISATION GEOMETRIQUE ET PROPRIETES DE TRANSPORT DE MILIEUX POREUX CONSOLIDES.**

Spécialité : Génie des Procédés

Mots clés : Milieux poreux consolidés
Analyse d'image
Porosimétrie au mercure
Conductivité électrique
Facteur de formation
Tortuosité
Surface spécifique
Ecoulement

Résumé :

La caractérisation de deux propriétés de transport de matière à l'intérieur de milieux poreux consolidés "modèle" (réalisés par le frittage partiel d'un empilement de billes de verre) a nécessité l'analyse de ces textures poreuses et ce par porosimétrie au mercure et/ou par analyse d'image.

Un dispositif expérimental approprié a été mis au point pour étudier chacune de ces deux propriétés à savoir la conductivité électrique d'un électrolyte et l'écoulement d'un liquide.

Le facteur de formation, grandeur caractérisant la conductivité électrique, est indépendant de la taille des particules composant le milieu et de l'électrolyte utilisé. Il vérifie la loi d'Archie pour des porosités comprises entre 0,20 et 0,40. Il permet d'évaluer la tortuosité T du milieu en assimilant l'espace poreux à un réseau de tubes tortueux.

Deux modèles ont été utilisés pour expliciter les lois expérimentales de variation de la chute de pression subie par le liquide entre les deux extrémités du milieu en fonction de sa vitesse. Le modèle d'Ergun est inadapté à notre étude. Par contre, le modèle de Comiti lui est préférable.