HAL
open science

Modélisation du gonflement radiolytique d'enrobés bitumineux

Antoine Marchal

To cite this version:

Antoine Marchal. Modélisation du gonflement radiolytique d'enrobés bitumineux. Autre. Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2015. Français. NNT : 2015ENMP0038 . tel-01298061

HAL Id: tel-01298061

https://pastel.hal.science/tel-01298061

Submitted on 5 Apr 2016

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

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

ParisTech
INSTITUT DES SCIENCES ET TECHNOLOGIES
PARIS INSTITUTE OF TECHNOLOGY

MINES ParisTech

École doctorale n° 364 : Sciences Fondamentales et Appliquées

Doctorat ParisTech

THÈSE

pour obtenir le grade de docteur délivré par

l'École Nationale Supérieure des Mines de Paris

Spécialité doctorale "Science et Génie des Matériaux"

présentée et soutenue publiquement par

Antoine MARCHAL

le 6 février 2015

Modélisation du gonflement radiolytique d'enrobés bitumineux

Directeur de thèse : **Rudy VALETTE**
Co-directeur de thèse : **Bruno VERGNES**
Co-encadrement de la thèse : **Arnaud POULESQUEN**

Jury

M. Xavier CHATEAU,	Directeur de recherche, Université Paris-Est, Laboratoire Navier	Rapporteur
M. Michel CLOITRE,	Directeur de recherche, ESPCI ParisTech, Matière Molle et Chimie	Président
M. Toby FARES,	Chargé d'affaires, Areva	Invité
M. Philippe MARCHAL,	Ingénieur de recherche, ENSIC, LRGP	Rapporteur
M. Arnaud POULESQUEN,	Ingénieur chercheur, CEA Marcoule	Encadrant CEA
M. Rudy VALETTE,	Maître-Assistant, MINES ParisTech, CEMEF	Directeur de thèse
M. Bruno VERGNES,	Directeur de recherche, MINES ParisTech, CEMEF	Co-directeur de thèse

MINES ParisTech
Centre de Mise Forme des Matériaux (CEMEF)
UMR CNRS 7635, F-06904 Sophia Antipolis, France

THESE

Remerciements

Je tiens à remercier en premier lieu mes encadrants de thèse : Rudy, Arnaud et Bruno. Ils m'ont permis de mener cette thèse à bien et ont toujours su me motiver. Ce sont eux qui m'ont donné goût pour la recherche. Je suis en particulier très reconnaissant pour leur disponibilité et leur soutien pendant les moments difficiles.

Je remercie les membres du jury qui ont accepté de consacrer du temps à la lecture et l'analyse de mon travail. C'est en partie grâce à eux que la soutenance a été pour moi le meilleur moment de la thèse.

Je remercie tous les sportifs du CEMEF avec qui j'ai passé de très bons moments (footings du midi, col sous la grêle, Gélas dans les nuages, squash, trails, duathlons, triathlons, sorties VTT, escalade...).

Je remercie mes voisines de bureau pour toutes ces pauses goûter autour de crêpes et gâteaux, ainsi que le pâtissier du bâtiment I pour ses délicieux desserts.

Je remercie les artistes, ô combien talentueux, qui ont réalisé mon affiche de thèse (celle-là même que j'ai fait imprimer en format A0 et que j'ai encadrée dans mon salon).

Je remercie l'ensemble du personnel du site des Mines de Sophia Antipolis pour leur accueil et leur gentillesse tout au long de ces 3 années de thèse.

Je remercie les personnes de l'ICSM et du CEA avec qui j'ai travaillé, notamment pour les observations MEB et les essais de génération de bulles.

Je remercie toute ma famille pour leur soutien, en particulier mes parents et mes grands-parents, ainsi que Samson et Quentin pour leurs idées toutes plus lumineuses les unes que les autres. J'ai également une pensée particulière pour Christophe, Nadia, Emeline et Mathis.

Table des matières

Glossaire **ix**

Introduction générale **1**

1 Présentation du matériau et des phénomènes **9**
1.1 Microtomographie aux rayons X . . . 10
1.1.1 Principe . . . 10
1.1.2 Traitement de l'image . . . 11
1.1.3 Résultats . . . 16
1.1.4 Conclusions . . . 19
1.2 Observations par MEB . . . 20
1.2.1 Dispositif . . . 21
1.2.2 Enrobé contenant des monosels $BaSO_4$ ou $NaNO_3$ . . . 21
1.2.3 Enrobé contenant du bi-sel $BaSO_4$-$NaNO_3$ . . . 22
1.2.4 Enrobé industriel STE3 . . . 23
1.2.5 Relief de l'échantillon . . . 25
1.2.6 Discussion . . . 26
1.3 Paramètres matériaux et mécanismes mis en jeu . . . 27
1.3.1 Piégeage de l'hydrogène par le sulfure de cobalt . . . 27
1.3.2 Solubilité et coefficient de diffusion du dihydrogène dans l'enrobé . 28
1.3.3 Radio-oxydation du bitume en surface . . . 29
1.3.4 Recensement des phénomènes mis en jeu . . . 30

2 Modélisation de la croissance des bulles **41**
2.1 Hypothèses du modèle . . . 42
2.2 Croissance d'une bulle isolée . . . 42
2.2.1 Croissance hydrodynamique . . . 43
2.2.2 Croissance diffusive . . . 47
2.2.3 Adimensionnement du problème . . . 51
2.2.4 Résolution de la croissance réelle d'une bulle isolée . . . 52
2.2.5 Estimation du temps de vie d'une bulle dans le fût . . . 53
2.3 Évolution d'une population de bulles . . . 54
2.3.1 Mûrissement d'Ostwald . . . 55
2.3.2 Modèle d'évolution d'une population . . . 57
2.3.3 Problème adimensionné . . . 58
2.4 Germination . . . 59

2.4.1 Germination seuil 60
2.4.2 Germination continue 62
2.5 Étude analytique monodisperse 64
2.5.1 Grandeurs physiques considérées dans cette étude 64
2.5.2 Modèle analytique 64
2.5.3 Régime stationnaire 66
2.5.4 Cas particulier de la tranche inférieure du fût 67
2.6 Évacuation du gaz par diffusion 70

3 Implémentation du code de gonflement 73
3.1 Architecture du programme principal 74
3.2 Déclaration des variables - Adimensionnement 76
3.3 Intégration du terme source par Rabbi 76
3.4 Discrétisation du problème 77
3.5 Adaptation du maillage en $\tilde{R}$ 78
3.6 Adaptation du maillage en z 82
3.7 Calcul du terme source et de la dose intégrée 83
3.8 Résolution des équations d'évolution 84
3.8.1 Croissance 85
3.8.2 Mise à jour de la sursaturation 86
3.8.3 Diffusion de gaz en hauteur 87
3.8.4 Germination 88
3.8.5 Migration 90
3.9 Adaptation du pas de temps 92
3.10 Évolution de la viscosité - Loi de vieillissement 94
3.11 Calcul du gonflement 95
3.12 Calcul de l'évacuation de gaz par migration des bulles 96

4 Prédictions du modèle 97
4.1 Évolution sans migration et sans germination 98
4.1.1 Influence de la taille initiale des bulles 98
4.1.2 Influence du débit de dose 100
4.1.3 Influence du coefficient de diffusion 101
4.2 Évolution d'une population avec migration 102
4.2.1 Introduction des résultats des simulations numériques 102
4.2.2 Analyse détaillée d'une simulation 105
4.2.3 Étude de sensibilité 116
4.2.4 Discussion sur la modélisation de la germination 119
4.2.5 Discussion sur le pic initial de gonflement et sur la physique 125
4.3 Comparaison avec les résultats expérimentaux 127
4.3.1 Échantillons irradiés industriellement à forts débits de dose 127
4.3.2 Simulation d'un fût réel 129

5 Cas particulier d'un fluide à seuil **131**
5.1 Croissance d'une bulle isolée dans un fluide à seuil 132
5.1.1 Croissance hydrodynamique 133
5.1.2 Problème adimensionné 142
5.1.3 Croissance réelle d'une bulle dans un fluide à seuil 142
5.2 Évolution d'une population sans migration 144
5.2.1 Effet qualitatif du seuil sur une population 144
5.2.2 Quantification de l'impact du seuil sur une population 146
5.3 Évolution avec migration sans germination 149
5.3.1 Condition de migration 149
5.3.2 Comportement d'une population 151
5.3.3 Suivi du débit de gaz sortant et du gonflement 155
5.4 Conclusion du chapitre 157

Conclusion et perspectives **159**

Bibliographie **169**

Annexe : formulaire en coordonnées sphériques **175**

Glossaire

a	paramètre de germination	(sans dimension)
$c(r,t)$	concentration massique en H_2	$(\mathrm{kg\,m^{-3}})$
c_s	concentration massique à saturation en H_2	$(\mathrm{kg\,m^{-3}})$
c_R	concentration massique en H_2 à l'interface de la bulle	$(\mathrm{kg\,m^{-3}})$
$\overline{c}$	concentration massique moyenne en H_2	$(\mathrm{kg\,m^{-3}})$
c_e	concentration massique en H_2 à une interface plane	$(\mathrm{kg\,m^{-3}})$
c_0	concentration massique en H_2 au fond du récipient	$(\mathrm{kg\,m^{-3}})$
d_r	distance moyenne de remontée d'une bulle	m
$\dot{d}$	débit de dose	(Gy/h)
D	coefficient de diffusion	$(\mathrm{m^2\,s^{-1}})$
D_d	débit de gaz évacué par diffusion	$(\mathrm{kg\,s^{-1}})$
D_i	dose intégrée	(Gy)
E	module d'élasticité	(Pa)
E_c	module d'élasticité en compression	(Pa)
$f(\tilde{R},z,t)$	densité de distribution de tailles de bulles adimensionnée	(sans dimension)
$\boldsymbol{f_e}$	efforts extérieurs (dans l'écriture de l'équilibre dynamique)	$(\mathrm{N\,m^{-3}})$
fc	fonction critère pour le remaillage	(sans dimension)
$F(R,Z,t)$	densité de distribution de tailles de bulles	(m^{-4})
$F_{trainee}$	effort de traînée subi par une bulle en mouvement	(N)
g	accélération de la pesanteur	$(\mathrm{m\,s^{-2}})$
g_d	variation de concentration adimensionnée par diffusion	(sans dimension)
G	gonflement	(sans dimension)
G_d	variation de concentration de gaz due à la diffusion	$(\mathrm{kg\,m^{-3}\,s^{-1}})$
h	hauteur du récipient	(m)
h_f	hauteur d'un fût	(m)
h_t	hauteur d'une tranche de matériau	(m)
H	constante de Henry	$(\mathrm{m^{-2}\,s^2})$
i	indice numérique faisant référence à la dimension $\tilde{R}$	(sans dimension)
j	indice numérique faisant référence à la dimension temporelle	(sans dimension)
J	flux de diffusion de gaz	$(\mathrm{kg\,m^{-2}\,s^{-1}})$
k	indice numérique faisant référence à la dimension z	(sans dimension)
k_v	constante dans l'expression de la vitesse de migration des bulles	$\mathrm{m^{-1}\,s^{-1}}$
k_B	constante de Boltzmann	$(\mathrm{m^2\,kg\,s^{-2}\,K^{-1}})$
k_h	constante d'intégration dans la résolution hydrodynamique	(m)
K_{LSW}	vitesse de mûrissement d'une population de bulles	(sans dimension)
K_y	constante dans la croissance d'une bulle dans un fluide à seuil	(sans dimension)

M	masse molaire du dihydrogène	$\mathrm{kg\,mol^{-1}}$
$\overrightarrow{n}$	vecteur unitaire normal à la surface de la bulle	(sans dimension)
N	nombre de bulles par unité de volume en population monodisperse	$(\mathrm{m^{-3}})$
$\mathcal{N}$	nombre d'Avogadro	$(\mathrm{mol^{-1}})$
$p(r,t)$	pression dans le fluide	(Pa)
p_i	pression à l'intérieur de la bulle	(Pa)
p_∞	pression extérieure	(Pa)
Δp	différence de pression à l'interface de la bulle	(Pa)
Pe	nombre de Peclet	(sans dimension)
Q_r	Masse de gaz créée par unité de temps par radiolyse	$(\mathrm{kg\,s^{-1}})$
r	variable d'espace en coordonnées sphériques	(m)
r_l	rayon de limite élastique dans un fluide à seuil	(m)
R	rayon d'une bulle	(m)
R_B	constante des gaz parfaits (8.314)	$(\mathrm{kg\,m^2\,s^{-2}\,mol^{-1}\,K^{-1}})$
$R_c(t)$	rayon critique pour qu'une bulle puisse croître	(m)
Re	nombre de Reynolds	sans dimension
$R_\varepsilon(t)$	rayon d'adimensionnement	(m)
R_0	rayon initial d'une bulle	(m)
R_c	rayon limite de croissance/décroissance	(m)
$\tilde{R}$	rayon adimensionné d'une bulle	(sans dimension)
s	concentration adimensionnée en H_2	(sans dimension)
s_i	concentration adimensionnée en H_2 dans la bulle	(sans dimension)
s_R	concentration adimensionnée en H_2 à l'interface de la bulle	(sans dimension)
$\overline{s}$	concentration adimensionnée moyenne en H_2	(sans dimension)
S	section du récipient	$(\mathrm{m^2})$
S_o	solubilité du H_2 dans le bitume	$(\mathrm{m^3\,m^{-3}})$
$\dot{S}$	terme source adimensionné	$(\mathrm{s^{-1}})$
t	temps	(s)
t_g	terme de germination exprimé en volume	$(\mathrm{m^3\,m^{-3}\,s^{-1}})$
t_h	temps intervenant dans la résolution hydrodynamique	(s)
t_r	temps de remontée d'une bulle	(s)
T	température	(K)
T_{sm}	terme source massique	$(\mathrm{kg\,m^{-3}\,s^{-1}})$
T_{sv}	terme source volumique	$(\mathrm{m^3\,m^{-3}\,s^{-1}})$
u	vitesse radiale du fluide	$(\mathrm{m\,s^{-1}})$
$\boldsymbol{v}$	vecteur vitesse du fluide en coordonnées sphériques	(vecteur)
v_z	vitesse adimensionnée de migration d'une bulle	(sans dimension)
V	volume d'une bulle	$(\mathrm{m^3})$
V_c	volume de gaz impliqué par la croissance des bulles	$(\mathrm{m^3})$
V_m	volume molaire moyen du gaz	$(\mathrm{m^3\,mol^{-1}})$
V_{mig}	volume de gaz impliqué par la migration des bulles	$(\mathrm{m^3})$
V_r	volume de gaz impliqué par le terme source	$(\mathrm{m^3})$
V_z	vitesse de migration d'une bulle	$(\mathrm{m\,s^{-1}})$
$\overline{V}_n$	volume moyen en nombre d'une population de bulles	$(\mathrm{m^3})$
$\overline{V}_v$	volume moyen en volume d'une population de bulles	$(\mathrm{m^3})$

w	fonction numérique représentant la taille de maille en $\tilde{R}$	(sans dimension)
z	variable adimensionnée d'espace selon l'axe du récipient	(sans dimension)
Z	variable d'espace selon l'axe du récipient	(m)
β	seuil d'écoulement adimensionné	(sans dimension)
γ	tension de surface entre le dihydrogène et le bitume	($\mathrm{N\,m^{-1}}$)
$\dot{\gamma}$	taux de cisaillement engendré par la migration d'une bulle	($\mathrm{s^{-1}}$)
ε	sursaturation	(sans dimension)
ε_0	sursaturation initiale	(sans dimension)
$\boldsymbol{\varepsilon}$	tenseur de déformation	(sans dimension)
ε_l	déformation limite élastique	(sans dimension)
η	viscosité dynamique du bitume	(Pa s)
η_0	viscosité dynamique initiale du bitume	(Pa s)
η_c	viscosité dynamique en compression	(Pa s)
θ_d	temps lié à la croissance diffusive	(s)
θ_h	temps lié à la croissance hydrodynamique	(s)
ρ_{bitume}	masse volumique du bitume	($\mathrm{kg\,m^{-3}}$)
ρ_{gi}	masse volumique du gaz dan une bulle	($\mathrm{kg\,m^{-3}}$)
$\Delta\rho$	différence de masse volumique entre le gaz et le bitume	($\mathrm{kg\,m^{-3}}$)
$\boldsymbol{\sigma}$	tenseur des contraintes	(tenseur)
σ_a	contrainte induite par la poussée d'Archimède d'une bulle	(Pa)
σ_y	contrainte seuil	(Pa)
$\boldsymbol{\tau}$	tenseur déviatorique des contraintes	(tenseur)
τ_s	seuil d'écoulement de l'enrobé bitumineux	(Pa)
ϕ	fraction volumique des bulles	(sans dimension)
ψ_s	terme adimensionné de germination	(sans dimension)
Ψ_s	terme de germination	($\mathrm{m^{-1}\,m^{-3}\,s^{-1}}$)

Introduction générale

Avec plus d'une cinquantaine de réacteurs nucléaires en fonctionnement, la France a une production d'électricité à plus de 75% d'origine nucléaire. Cette industrie produit des déchets qu'il s'agit de gérer sur le long terme. Une très faible quantité de ces déchets (moins de 1% du volume total) représente la majorité de la radioactivité émise [1] (plus de 95 %) : ce sont les déchets issus du combustible irradié. Ces derniers, dits de hautes activités, sont vitrifiés puis destinés à un stockage en profondeur après une période d'entreposage dans des piscines de refroidissement. Pour les déchets restants, de moyenne activité (MA), faible activité (FA) ou très faible activité (TFA), représentant le plus gros volume mais aussi la plus faible part d'émission radioactive, il existe divers procédés de conditionnement, dont l'enrobage dans du bitume coulé dans des fûts métalliques. Cette production industrielle a été employée de 1966 à 2007 et seuls quelques dizaines de fûts sont toujours en cours de production sur le site de Marcoule en attendant la mise en place d'un atelier de cimentation. Actuellement, 80 000 fûts environ d'enrobés bitumineux sont entreposés dans l'attente d'un stockage définitif. Le CEA (Commissariat à l'Energie Atomique et aux Energies Renouvelables) de Marcoule a la charge d'une partie de ces fûts, l'autre partie étant à la charge de la société Areva et entreposés sur le site de la Hague.

Le choix du bitume comme matrice de confinement pour les déchets de faible et moyenne activité s'est notamment fait pour son fort pouvoir confinant, son imperméabilité et sa faible solubilité dans l'eau.

Les déchets concernés par l'enrobage dans du bitume sont des déchets de faible et moyenne activités à vie courte (FMAVC) et moyenne activité à vie longue (MAVL). Les déchets à vie courte sont ceux dont la demi-vie (temps au bout duquel la moitié des éléments radioactifs se sont désintégrés) ne dépasse par 31 ans. Ils sont majoritairement issus du traitement des effluents des usines de traitement des combustibles usés provenant des centrales nucléaires, dans lesquelles le combustible nucléaire usagé est traité avant d'être soit recyclé et réintégré au cycle du combustible, soit relégué au stade de déchet ultime. Cette opération engendre la production d'effluents liquides contenant des radionucléides. La filtration des effluents est effectuée dans l'usine STEL (Station de Traitement des Effluents Liquides) à Marcoule pour le CEA et aux usines STE2 et STE3 (Station de Traitement des Effluents 2 et 3) à La Hague pour Areva. Le principe de traitement des effluents est de piéger et extraire les radionucléides grâce aux ajouts successifs de différents sels de co-précipitation (sulfate de baryum $BaSO_4$, précipité préformé de ferrocyanure de nickel PPFeNi, et sulfure de cobalt CoS) [2]. Une boue saline contenant les radionucléides ainsi que les sels de co-précipitation est alors obtenue.

Les enrobés bitumineux sont produits en mélangeant la boue saline liquide avec du bitume via un procédé d'extrusion. Pour cela, le bitume est chauffé à 140 °C, passé dans une extrudeuse bivis et la boue saline est incorporée et enrobée dans le bitume chaud. L'eau contenue dans la boue est évaporée en ligne lors du procédé et le produit obtenu est déshydraté. Il est ensuite directement conditionné dans des fûts métalliques d'une contenance de 220 litres, qui sont pour le moment entreposés dans des casemates enterrées ventilées et sous surveillance au CEA de Marcoule, et dans des entreposages dédiés sur le site de la Hague. L'ANDRA (Agence Nationale pour la gestion des Déchets Radioactifs) étudie actuellement la possibilité d'un stockage en profondeur pour une partie de ces fûts [3].

L'enrobé de bitume contient donc des radioéléments qui peuvent être émetteurs alpha, béta ou gamma. Ils ont chacun des propriétés différentes, tant sur la profondeur de pénétration du rayonnement dans la matière que sur l'énergie dissipée [4]. Le rayonnement alpha est le plus énergétique mais possède le plus faible parcours dans la matière. A l'opposé, le rayonnement gamma est moins énergétique mais irradie la matière sur de grandes distances. Ces rayonnements sont à l'origine de la radiolyse du bitume. L'irradiation va créer des gaz de radiolyse caractérisés par un rendement de production gazeux appelé rendement radiolytique. Il correspond au nombre de moles de gaz généré par quantité d'énergie déposée dans le matériau. Pour le rayonnement alpha, le rendement radiolytique de dihydrogène dans le bitume est de l'ordre de $10^{-7}\,\mathrm{mol\,J^{-1}}$. Pour les rayonnements bêta (émission d'un électron, portée de quelques mètres dans l'air) et gamma (rayonnement électromagnétique, portée de plusieurs centaines de mètres dans l'air), le rendement radiolytique est environ $0{,}3 \times 10^{-7}\,\mathrm{mol\,J^{-1}}$. 95% de la quantité de gaz produite étant du dihydrogène, on ne considèrera que ce gaz dans ce travail. La production de dihydrogène par radiolyse dans le bitume est appelée terme source dans l'ensemble de ce travail.

Pour appréhender le comportement du bitume sous irradiation, des études expérimentales en irradiateur industriel ont été menées par Mouazen sur des échantillons de bitume et d'enrobé bitumineux [5]. La préparation de ces enrobés s'est faite dans les mêmes conditions que pour les stations de traitement des effluents (procédé d'extrusion bivis), mais avec une boue saline ne contenant pas de radionucléides. Les échantillons, contenus dans des béchers en verre, ont ensuite été exposés à des rayonnements externes gamma (dans des irradiateurs dont la source de rayonnement est du cobalt 60) dans différentes conditions opératoires (débits de dose et doses intégrées). L'avantage de cette irradiation est que les échantillons ne contiennent plus aucune activité lorsqu'ils ne sont plus exposés et on peut donc les manipuler aisément. Un autre intérêt d'utiliser des rayonnements externes est qu'ils permettent d'atteindre de fortes doses intégrées rapidement en augmentant le débit de dose (vieillissement radiolytique accéléré). L'unité de mesure du débit de dose est le Gy/h (Gray par heure). Un Gray vaut $1\,\mathrm{J\,kg^{-1}}$, ce qui correspond à une quantité d'énergie dissipée par masse de matériau exposé, c'est l'unité de mesure de la dose reçue. Pour déterminer la quantité de gaz créé par unité de masse de bitume, il faut multiplier la dose reçue par le rendement radiolytique [1].

1. Le nombre de moles est donné par le produit du débit de dose, du temps d'exposition, de la masse de matière irradiée et du rendement radiolytique

Les radionucléides incorporés dans les enrobés bitumineux ont une activité initiale qui va décroître sur plusieurs siècles, compte tenu de la décroissance radioactive. Par conséquent, il y a une création de gaz en continu sur cette même durée. Initialement vierge de tout gaz, le bitume comporte des volumes libres et va pouvoir y accueillir le dihydrogène créé, on dit que le gaz est solubilisé. Mais cet espace libre est limité et le bitume ne peut solubiliser qu'une certaine quantité de gaz : c'est ce qu'on appelle la limite de solubilité. Lorsque la concentration en gaz dans le bitume dépasse cette valeur, le matériau est sursaturé et des germes de bulles (regroupement de plusieurs molécules de gaz) vont se former. Ces bulles vont par la suite pouvoir croître en se nourrissant du gaz créé et cela va conduire au gonflement macroscopique de l'enrobé si la production de gaz est supérieure à l'évacuation. Les bulles de gaz ayant une plus faible densité que le bitume, elles vont éventuellement remonter dans le matériau sous l'effet de la poussée d'Archimède. Il y aura alors une évacuation de gaz et la valeur du gonflement global de l'enrobé résultera de la compétition entre création (radiolyse) et évacuation (migration des bulles et diffusion) de gaz.

Pour pouvoir calculer le gonflement, il faut donc évaluer l'évacuation de gaz qui résulte de la migration des bulles et de la diffusion moléculaire. La vitesse d'ascension des bulles dépend notamment de leur taille [6]. Elle est donnée par l'équation de Hadamard Rybczynski qui suppose les bulles sphériques mais déformables :

$$V_z = \frac{\Delta\rho g R^2}{3\eta}$$

où V_z est la vitesse de migration, $\Delta\rho$ la différence de masse volumique entre le gaz et la matrice, g l'accélération de pesanteur, R le rayon de la bulle et η la viscosité de la matrice. Cette équation est obtenue en négligeant la tension de surface, les forces d'inertie et la diffusion.

Il est donc nécessaire de connaître la taille des bulles, ce qui met en jeu de nombreux mécanismes qu'il faut prendre en compte. En premier lieu, il y a la germination des bulles, c'est le début de leur histoire. Elles doivent ensuite croître en se nourrissant du gaz créé, ce qui met en jeu la diffusion du gaz à travers la matrice de bitume. S'ajoutent à cela des phénomènes dus à la présence de plusieurs bulles, comme le mûrissement d'Ostwald, qui décrit la croissance des grosses bulles au détriment des plus petites qui se voient forcées de décroître [7]. Des bulles peuvent également fusionner (phénomène de coalescence) sous certaines conditions, si elles se rencontrent suite à leur migration. Et tout cela est régulé par un bilan de masse local, impliquant la quantité de gaz créé, la quantité de gaz solubilisé et la quantité de gaz absorbé par les bulles. Le travail de modélisation présenté dans cette thèse consistera à assembler tous ces mécanismes pour in fine déterminer le gonflement du matériau.

La quantité de gaz créé dans le bitume est une donnée d'entrée maitrisée par le CEA.

Un code de calcul (RABBI [2]) du terme source a été développé pour cela [8]. Il prend comme paramètres d'entrée le spectre initial (la nature des radionucléides présents et leur activité), le pourcentage massique de sels dans le bitume, la masse totale d'enrobé, le rendement radiolytique des différents rayonnements et fournit en données de sortie le volume de gaz créé, le débit de dose instantané et la dose reçue au cours du temps. Il tient compte des différentes filiations des éléments et permet d'effectuer des calculs sur des durées de plusieurs milliers d'années.

Dans ce travail, une des principales difficultés liées au bitume est sa couleur noire. On ne peut ainsi observer ni la répartition des sels dans la matrice, ni les bulles de gaz lorsqu'il a été irradié. Or ces deux informations sont nécessaires pour bien connaître le matériau et appréhender au mieux le comportement du gaz dans le bitume. C'est pourquoi, au cours de sa thèse, Mouazen a fait de l'imagerie par microtomographie aux rayons X sur des échantillons d'enrobés irradiés [9]. Cela lui a permis d'observer la population de bulles à l'intérieur du matériau pour 2 débits de dose différents et pour plusieurs doses reçues (figure 1). Pour ce qui est de la répartition des sels de co-précipitation dans la matrice, nous aurons recours à des observations par microscopie électronique à balayage.

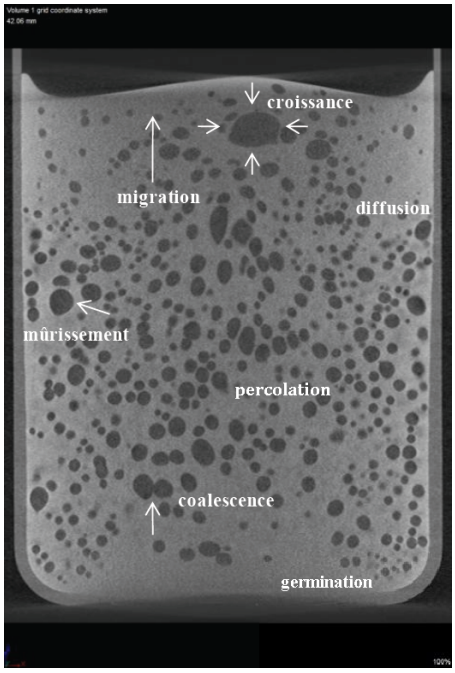


FIGURE 1 – Image de microtomographie aux rayons X d'un bitume pur après irradiations γ [5]

Le bitume possède une très grande énergie d'activation thermique ($155\,\mathrm{kJ\,mol^{-1}}$) [5], il est donc très sensible à la température. Il est également très collant, ce qui rend sa manipulation particulièrement difficile. Ainsi, à faible température (10 °C), il est fragile et cassant, il est malléable à température ambiante et il devient collant et de moins en moins visqueux à haute température (50 °C et plus). De plus, l'exposition aux radiations modifie

2. RAdiolyse de Boues BItuminées

ses propriétés rhéologiques. En libérant de l'hydrogène lors de sa radiolyse, il subit des réticulations et sa viscosité augmente avec la dose reçue. On constate également l'apparition d'un seuil d'écoulement lorsqu'il est irradié [5] : le matériau réagit comme un solide lorsque la contrainte qu'on lui applique est inférieure à ce seuil, puis il s'écoule comme un liquide visqueux lorsqu'on lui applique une contrainte plus élevée. De même, l'ajout de sels en quantité variable (aux alentours de 40% en masse en moyenne) complexifie le comportement rhéologique du bitume. Mouazen a caractérisé l'impact de la présence de différents sels ainsi que l'impact des radiations sur la rhéologie du bitume et des enrobés bitumineux. Il a ainsi déterminé une loi de vieillissement [9] en fonction de la dose reçue. Nous nous appuierons sur ses travaux pour notre travail de modélisation.

La complexité principale de la modélisation du gonflement des fûts réside dans la largeur des gammes d'échelles de temps et d'espace qui doivent être couvertes. Le gonflement doit être prédit sur de longues périodes (de l'ordre de la centaine d'année), tandis que certains mécanismes s'effectuent à des échelles de temps de l'ordre de la seconde. Il en est de même pour la dimension spatiale. Les plus petits sels de co-précipitation présents dans le bitume, susceptibles d'être des sites de germination pour les bulles, ont des tailles de l'ordre du micromètre, tandis que les bulles peuvent atteindre des tailles de plusieurs centimètres. Les petites échelles étant susceptibles d'influer sur les grandes, il sera intéressant de pouvoir zoomer sur certains détails de la phénoménologie. Une fois leur influence macroscopique comprise, il sera alors possible, pour la suite, de prendre directement en considération leurs conséquences macroscopiques sans avoir besoin de faire de zoom à chaque fois qu'ils ont lieu. Cela est possible en développant des codes de calcul qui adaptent leur précision (en temps et espace) selon les besoins, c'est ce qui a été fait dans ce travail.

Le but de cette thèse est donc de mettre au point un modèle, puis de l'implémenter dans un code de calcul, pour prédire le gonflement de fûts d'enrobés bitumineux contenant des déchets radioactifs en condition d'entreposage, de transport et de stockage.

La première partie de ce travail (chapitre 1) a consisté à appréhender les propriétés et le comportement des enrobés bitumineux soumis à des irradiations gamma. Des observations par microscopie électronique à balayage ont été menées pour déterminer la répartition des sels dans l'enrobé après extrusion, pour des échantillons ayant été irradiés ou non. Les deux buts ici sont de savoir si la remontée des bulles peut être perturbée par la présence de sels ou d'agglomérats de sels et de savoir si la matrice de bitume est irradiée de manière homogène en volume ou si des fluctuations de concentration en gaz sont possibles.

Au cours de ses travaux de thèse, Mouazen a soumis des échantillons d'enrobés bitumineux à des irradiations gamma et il a pu observer les bulles de dihydrogène présentes dans le matériau par microtomographie aux rayons X [5]. Ces images nous sont précieuses pour appréhender les différents mécanismes liés aux bulles. Nous avons pour cela développé un code d'analyse de ces images pour en extraire notamment la distribution de tailles de bulles (chapitre 1), et ce pour deux débits de dose différents. Dans ce premier chapitre, nous avons également recensé et fait un état de l'art des connaissances sur ces mécanismes, pour pouvoir ensuite les adapter au cas du dihydrogène dans du bitume.

La première étape pour élaborer le modèle de gonflement est de comprendre la formation et la croissance d'une bulle isolée. Il faut ensuite considérer une population de bulles et voir les interactions qu'elles peuvent avoir entre elles, avant de prendre en compte leur migration par poussée d'Archimède. Tous ces aspects de modélisation font l'objet du chapitre 2. En particulier, les différents mécanismes énoncés dans le premier chapitre sont appliqués au cas de notre matériau et la prépondérance de certains est mise en évidence, ce qui nous permettra de faire quelques simplifications dans l'élaboration de notre modèle. En fin de ce chapitre, l'adimensionnement réalisé pour implémenter le code de calcul sera présenté, avec la définition de nombres adimensionnels caractéristiques de certains phénomènes.

Le modèle de gonflement établi dans ce travail de thèse ne pouvant être résolu analytiquement, un code de calcul par différences finies a été développé sous Matlab (chapitre 3). Ce modèle prend en paramètres d'entrée le terme source calculé par le programme RABBI, les données géométriques de l'échantillon ou du fût, ainsi que les propriétés physiques du matériau (coefficient de diffusion du dihydrogène dans le bitume, limite de solubilité, seuil d'écoulement ...). Il donne en sortie le gonflement du fût ainsi que la quantité de gaz évacué au cours du temps. La description de l'algorithme de résolution du modèle est présentée au chapitre 3 tandis que l'analyse des résultats qu'il fournit fait l'objet du chapitre 4.

Le code de calcul a été enrichi de plusieurs adaptations automatiques pour pallier les difficultés liées au caractère multi-échelles (aussi bien en temps qu'en espace) du problème. Schématiquement, le code résout le système d'équations composant le modèle à un instant donné, puis il s'incrémente pour calculer la solution après une durée définie. Cette durée est appelée le pas de temps entre deux itérations, elle s'adapte au cours de la simulation de manière à bien décrire des phénomènes brefs (diminution du pas de temps, raffinement du calcul), tout en permettant de simuler de grandes plages temporelles (augmentation du pas de temps lorsque l'évolution des grandeurs du problème est lente).

Pour résoudre le problème, il nous faut modéliser pertinemment et suivre l'évolution d'une population de bulles. Pour cela, la distribution de tailles de bulles a été discrétisée. On parle alors de classes de bulles, qui sont définies sur un maillage. Si le maillage est régulier, toutes les classes de bulles ont la même taille (un exemple de classe peut être : bulles dont le rayon est compris entre 4 et 5 mm, la taille de la classe est alors 1 mm). Une adaptation de ce maillage, basée sur l'évolution de la population de bulles et de la concentration en gaz dissous, est réalisée par le code pour limiter les erreurs numériques lors de la résolution du système d'équations composant le problème. L'idée est ici d'avoir des tailles de classes variables pour raffiner le maillage en présence de forts gradients, c'est-à-dire là où l'évolution de la population sera la plus importante. L'échantillon (ou le fût) simulé a été discrétisé en hauteur pour résoudre la migration des bulles par poussée d'Archimède. Ce maillage est également adaptatif, on le raffine là où le gradient vertical en concentration de gaz dissous est le plus grand. Au final, ces trois adaptations présentées au chapitre 3 (temps, discrétisation de la distribution de bulles et discrétisation de la hauteur du fût) rendent ce code très flexible et il s'adapte à une large gamme de géométries et de paramètres physiques d'entrée (spectre radiologique, viscosité, coefficient de diffusion...).

Les résultats obtenus numériquement quant à l'évolution d'une population de bulles et du

gonflement d'un enrobé irradié font l'objet du chapitre 4. Une première partie consacrée au cas d'une population immobile (sans prendre en compte la poussée d'Archimède) vise à quantifier l'importance du mûrissement d'Ostwald ainsi qu'à appréhender les conditions de germination des bulles. Une étude de sensibilité du code développé au cours de ce travail sera ensuite présentée, mettant ainsi en évidence l'influence des différents paramètres physiques du matériau et de la géométrie de l'échantillon étudié.

Une discussion sur la modélisation de la germination, appuyée par des résultats numériques et des considérations physiques, sera tenue en fin de chapitre 4. Plusieurs hypothèses seront étayées et comparées afin d'appréhender au mieux ce phénomène. Enfin, des résultats expérimentaux seront confrontés aux résultats obtenus numériquement en toute fin de chapitre 4.

Le cinquième et dernier chapitre de ce manuscrit est quant à lui entièrement dédié aux cas d'un fluide à seuil. En effet, bien que le seuil d'écoulement du bitume soit de faible valeur, l'étude de son influence a été jugée pertinente dans le cadre de ce travail. Une première partie du chapitre 5 traite ainsi de la croissance d'une bulle isolée dans un fluide à seuil. Suite à certaines contraintes liées à la géométrie du problème (coordonnées sphériques pour décrire la croissance d'une bulle), un modèle de Bingham modifié a été introduit. Puis, l'évolution d'une population de bulles dans un tel fluide est ensuite exposée ainsi que les conséquences qu'elle engendre sur le gonflement du matériau.

Chapitre 1

Présentation du matériau et des phénomènes mis en jeu

Sommaire

1.1 Microtomographie aux rayons X 10
1.1.1 Principe 10
1.1.2 Traitement de l'image 11
1.1.3 Résultats 16
1.1.4 Conclusions 19
1.2 Observations par MEB 20
1.2.1 Dispositif 21
1.2.2 Enrobé contenant des monosels $BaSO_4$ ou $NaNO_3$ 21
1.2.3 Enrobé contenant du bi-sel $BaSO_4$-$NaNO_3$ 22
1.2.4 Enrobé industriel STE3 23
1.2.5 Relief de l'échantillon 25
1.2.6 Discussion 26
1.3 Paramètres matériaux et mécanismes mis en jeu 27
1.3.1 Piégeage de l'hydrogène par le sulfure de cobalt 27
1.3.2 Solubilité et coefficient de diffusion du dihydrogène dans l'enrobé 28
1.3.3 Radio-oxydation du bitume en surface 29
1.3.4 Recensement des phénomènes mis en jeu 30

1.1 Microtomographie aux rayons X

Cette partie est consacrée aux résultats obtenus à partir des analyses d'images de microtomographie aux rayons X réalisées par Mouazen lors de sa thèse [5]. Ces images constituent une précieuse source d'information pour connaître la distribution des bulles dans l'enrobé, ainsi que pour comprendre leur comportement. Cependant, il n'est pas aisé d'extraire toutes ces informations. Nous avons mené ces analyses d'images à l'aide du langage Python, et notamment avec le module Morph-M qui est développé par le Centre de Morphologie Mathématique de l'Ecole des Mines de Paris. C'est un outil parfaitement adapté à l'analyse des images 3D.

1.1.1 Principe

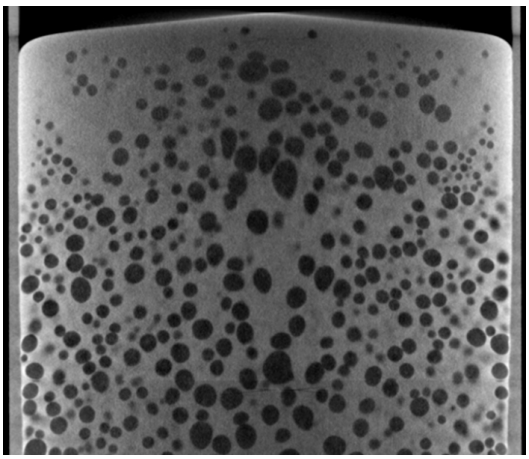
La tomographie est une méthode de caractérisation non destructive basée sur la détection de la densité du nuage électronique des atomes [10]. Un faisceau de rayons X est envoyé sur l'échantillon et des détecteurs reçoivent les rayons qui ont traversé la matière. Selon la densité électronique des atomes rencontrés, les rayons sont plus ou moins déviés, c'est ce qui permet de caractériser la nature chimique de la matière traversée. Il est très bien adapté à notre cas car le gaz que l'on veut détecter est du dihydrogène de densité électronique très faible en comparaison avec celle du bitume qui est une chaîne carbonée. On obtient ainsi de très bons contrastes entre le gaz et la matrice bitume.

Les images ont été obtenues par Mouazen [5] grâce à un tomographe Phoenix Nanotom M, de GE Inspection Technologies, avec un faisceau de rayons X de 150 kV. Pour cet appareil et la dimension des échantillons caractérisés (béchers de diamètre 8 cm et de hauteur 15 cm), la résolution des images obtenues est de 120 µm par pixel. La tomographie permet d'obtenir une succession de sections de l'objet d'étude : on a des vues en coupe régulièrement espacées de l'échantillon. Dans notre cas, si on les empile toutes les unes à la suite des autres, on recrée une image numérique virtuelle en 3D du bécher contenant l'enrobé bitumineux irradié. C'est à partir de cette image en volume que nous allons pouvoir obtenir des informations sur la population de bulles dans le matériau.

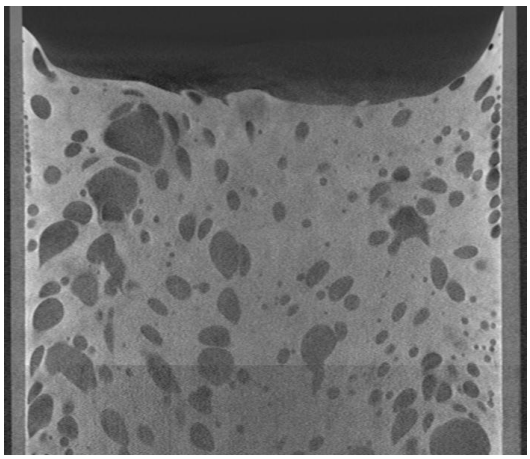
Au cours de sa thèse, Mouazen a fait une analyse de ces images dans l'objectif d'évaluer l'effet de la dose totale d'irradiation, d'une part sur le gonflement, et d'autre part sur la distribution et la quantité de bulles créées. Cependant, par manque de temps, il a dû simplifier son approche et s'est focalisé sur une seule image par échantillon : celle représentant la coupe verticale passant par l'axe du bécher. Cette image est celle qui représente le mieux l'échantillon entier. Il a ainsi obtenu des tendances concernant l'influence du débit de dose (2 cas ont été étudiés : 400 Gy/h et 5000 Gy/h) et la dose totale reçue pour un débit de dose de 5000 Gy/h (1 MGy et 4 MGy). Il a ainsi déterminé qu'à dose équivalente, un débit de dose plus fort conduit à un nombre de bulles plus faible mais de taille plus importante [5]. Il a visuellement constaté que, pour un fort débit de dose, les bulles sont de forme aléatoire tandis qu'à faible débit de dose, elles semblent être sphériques et de tailles relativement homogènes. Concernant la dose reçue et pour un débit de dose de 5000 Gy/h, il a constaté que les bulles étaient plus grosses et plus nombreuses dans l'échan-

tillon irradié à 4 MGy que dans l'échantillon n'ayant reçu que 1 MGy. L'objet de cette partie est d'améliorer la précision de ces résultats en menant une analyse d'images en 3D. Ceci nous permettra d'éviter certains biais induits par une analyse 2D pour des grandeurs volumiques (volumes des bulles). En effet, à partir d'une seule coupe de l'échantillon, les bulles peuvent en réalité être plus grosses que ce que l'on observe si le plan de la coupe ne passe pas par leur centre. Nous allons donc reconstituer l'échantillon en volume en empilant les différentes coupes obtenues par tomographie, puis mener une analyse volumique. Pour cela, plusieurs étapes de traitement d'images sont nécessaires.

Nous allons dans un premier temps exposer les différentes étapes du traitement, puis nous présenterons ensuite les résultats obtenus. Contrairement à l'étude qu'avait menée Mouazen, nous ne nous intéresserons ici qu'à l'influence du débit de dose (comparaison entre 400 Gy/h et 5000 Gy/h) sur la population de bulles. Cette tendance nous permettra d'émettre des hypothèses sur la population de bulles dans le cas d'une irradiation réelle (inférieure ou égale à 1 Gy/h). Les échantillons qu'il a analysés pour étudier l'influence de la dose totale reçue ont été obtenus pour un débit de dose de 5000 Gy/h. En observant les images obtenues en terme de forme et de répartition géométrique de bulles, on constate à 5000 Gy/h un régime chaotique très différent du cas à 400 Gy/h (figure 1.1). Pour cette raison, nous avons jugé que l'influence de la dose totale reçue pour un tel débit ne nous permettrait pas de tirer de conclusions pertinentes sur l'influence de la dose totale reçue dans le cas réel à 1 Gy/h.



(a) Débit de dose 400 Gy/h



(b) Débit de dose 5000 Gy/h

FIGURE 1.1 – Enrobés bitumineux irradiés à 1MGy, coupe verticale d'un bécher de diamètre 8cm

1.1.2 Traitement de l'image

Les images de tomographie brutes sont des images 2D codées en couleur représentant une section du bécher. Pour arriver à extraire des données sur les bulles (leur nombre, leur

taille et leur emplacement), il nous faut avoir une image 3D binaire filtrée. Voici les étapes successives du traitement :

Reconstruction de l'image 3D

Dans un souci de taille d'image, il faut tout d'abord convertir les images couleurs en images en niveaux de gris (figure 1.2). Python gère très bien cela grâce au module PIL [1]. On reconstruit ensuite l'image 3D du bécher en empilant les images obtenues dans un fichier .vis. Il faut, dans un premier temps, déclarer l'image 3D à créer avec les dimensions voulues. Ensuite, on va la remplir section par section avec les images 2D en niveaux de gris, de la même manière qu'on rangerait des diapositives dans un projecteur.

Détermination de l'échelle

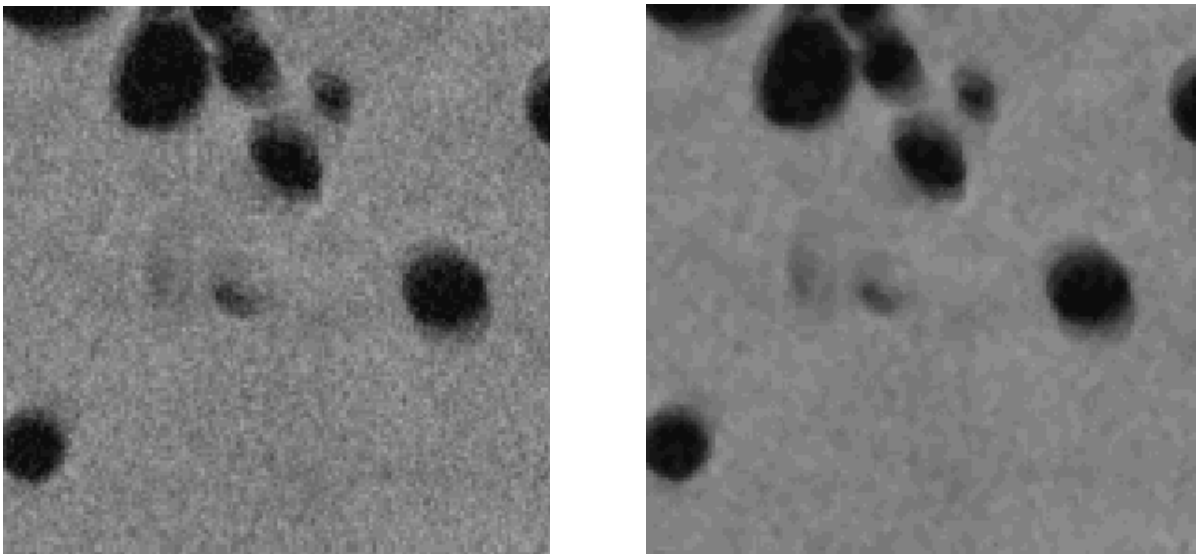
Pour obtenir des volumes de bulles en mm et non en voxels [2], il nous faut déterminer l'échelle de notre image, c'est-à-dire le volume que représente un voxel. On connaît le diamètre extérieur du bécher par mesure. Pour retrouver l'échelle, on va créer une procédure pour détecter les bords extérieurs du bécher dans notre image 3D. On pourra ainsi calculer le diamètre extérieur de celui-ci en pixels et calculer la longueur réelle que représente un pixel. De plus, l'espacement entre deux sections acquises par tomographie est égal à la longueur représentée par un pixel d'une image 2D. Cela signifie que, dans notre image 3D, un voxel est un cube. Il nous est donc aisé de calculer le volume qu'il représente.

Nettoyage de l'image

Une fois le volume de l'échantillon recréé, il faut nettoyer l'image. On applique tout d'abord un filtre médian à l'image (figure 1.2). Cela permet de gommer les petits défauts (parasites) qui pourraient par la suite être considérés à tort comme des bulles de gaz. On obtient une image lissée que l'on pourra par la suite binariser.

Pour pouvoir détecter les bulles de gaz, il va tout d'abord nous falloir déterminer le volume exact occupé par le matériau, c'est à dire enlever les parois du bécher ainsi que l'environnement autour de lui. On commence pour cela par déterminer la hauteur de bitume dans le pot en chaque endroit (figure 1.3). Ensuite on détecte le contour intérieur du bécher. On a ainsi repéré le volume exact occupé par le matériau dans le bécher. On va mettre en blanc tout ce qui est en dehors de ce volume (figure 1.3). L'image obtenue est donc blanche en tout endroit excepté dans le volume occupé par le matériau. Par la suite, nous allons binariser l'image (elle ne comportera que des pixels noirs et blancs), le gaz étant en noir tandis que le bitume sera en blanc. Ainsi, sur l'image finale, le gaz sera représenté en noir et tout le reste (bitume, bécher et extérieur du bécher) sera en blanc. Nous pourrons alors recenser les bulles de gaz.

1. Python Image Library est une bibliothèque de fonctions d'analyse d'images prédéfinies
2. un voxel représente le volume élémentaire d'une image 3D, de même qu'un pixel représente la surface élémentaire pour une image 2D



(a) Image en niveaux de gris (b) Image après filtre median

FIGURE 1.2 – Coupes 2D au cours du nettoyage

Pour binariser (ou seuiller) l'image, on va parcourir chaque voxel et, selon si sa valeur est supérieure ou inférieure au seuil [3] choisi, il sera respectivement colorié en blanc ou en noir. Nous obtenons une image binaire en noir et blanc (figure 1.4), le noir représentant le dihydrogène et le blanc tout ce qui n'est pas du dihydrogène [4].

Comptage des bulles

L'objectif de l'analyse des images de tomographie est d'obtenir la distribution de taille des bulles dans le matériau. Pour cela, j'ai repris un code développé par Hukic [11] [5] que j'ai adapté à mes images 3D et réécrit en langage Python.

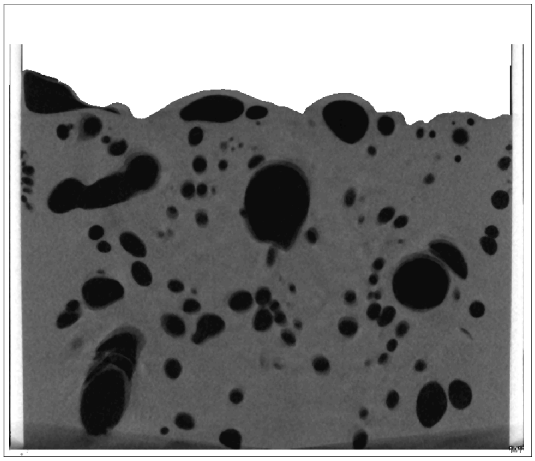
Le principe général est de parcourir l'image entière voxel par voxel. On repère chaque voxel par ses 3 coordonnées x (axe horizontal de gauche à droite), y (axe vertical descendant) et z (axe suivant horizontal de l'avant vers l'arrière du bécher). On parcourt l'image selon x d'abord, puis selon y et enfin selon z (de la même manière que l'on lirait un livre, z étant le numéro de la page, y le numéro de la ligne et x la position d'une lettre sur la ligne). Après avoir été parcouru, chaque voxel est marqué de sorte qu'on ne s'en soucie plus.

Avant de parcourir l'image, on met en place des compteurs qui vont nous permettre de

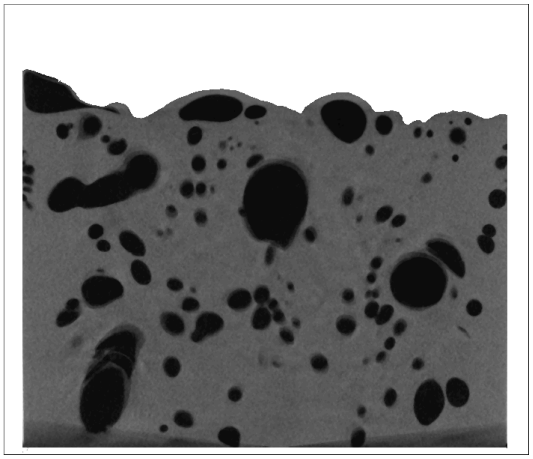
3. A ce stade, l'image est en niveaux de gris, un voxel est représenté par une valeur comprise entre 0 (noir) et 255 (blanc), le seuil est la valeur critique qui nous permettra de déterminer si le voxel représente du gaz ou non

4. Notons qu'à cet instant nous ne nous préoccupons plus de la quantité de bitume. Celle-ci pourra aisément être déterminée par différence entre le volume total repéré ci-avant et le volume de gaz dans le bécher calculé par la suite.

5. code développé en langage C++ pour recenser des grains sur une image 2D de la micro-structure d'un métal



(a) Détection de la hauteur d'enrobé



(b) Volume occupé par l'enrobé

FIGURE 1.3 – Coupes 2D au cours du nettoyage

stocker le nombre de bulles détectées ainsi que leur taille (nombre de voxels qui la composent) et leur emplacement (coordonnées du premier voxel détecté appartenant à la bulle).

Lors du parcours de l'image, dès que l'on rencontre un voxel noir, on sait que l'on rentre dans une bulle. On incrémente alors le compteur du nombre de bulles. Puis on explore les 6 voxels voisins [6] pour voir s'ils appartiennent également à la bulle (donc si ils sont noirs). Pour chaque voxel voisin noir, nous incrémentons le compteur du nombre de voxels dans la bulle et nous répétons l'opération (exploration de ses voisins). Nous avons ainsi une ramification dans la détection des voxels appartenant à la bulle. Cette méthode permet de détecter la totalité du volume des bulles, mêmes lorsqu'elles ont des formes complexes (lorsqu'elles sont non "connexes" et non "simplement connexes", par exemple).

Notons que, lorsque nous arrivons sur un voxel blanc (donc n'appartenant pas à la bulle), nous n'explorons pas son voisinage (cette ramification meurt en quelque sorte), nous sommes sur la frontière de la bulle. Lorsque nous n'avons plus de ramification en vie (elles ont toutes fini par déboucher sur un pixel blanc), nous avons terminé d'explorer la bulle. On enregistre alors son numéro, le nombre de voxels qui la composent et les coordonnées du premier voxel lui appartenant que nous avons détecté. Après cela, nous continuons à parcourir l'image jusqu'à rencontrer une nouvelle bulle, et ce jusqu'à ce que toute l'image ait été parcourue. Notons que le marquage des voxels fait que, lorsque nous parcourons l'image et que nous arrivons sur un voxel noir appartenant à une bulle déjà détectée, on l'ignore.

6. On fait le choix de n'explorer que les 6 voxels voisins et non les 26 pour limiter les erreurs consistant à comptabiliser 2 bulles proches voisines comme une seule. Cela est d'autant plus important si aucune segmentation (détaillée dans la suite de ce chapitre) n'a été réalisée au préalable.

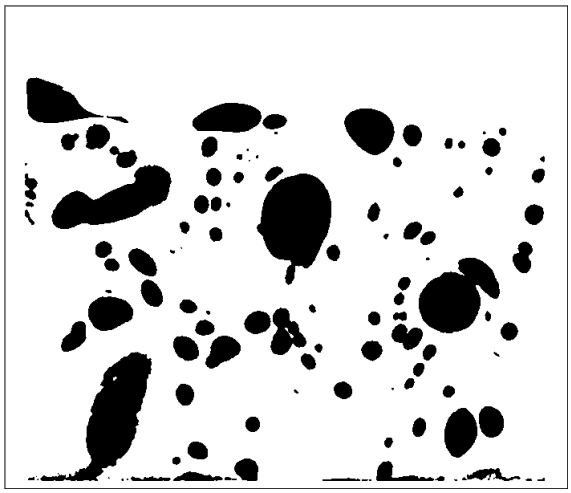


FIGURE 1.4 – Coupe 2D de l'image seuillée

Traitement des données

Après avoir balayé toute l'image 3D, le programme enregistre les résultats du calcul dans un fichier .xls. On obtient ainsi le numéro de chaque bulle, le nombre de voxels qui la composent et les coordonnées du premier voxel détecté lui appartenant. Il faut ensuite traiter ces données avec un tableur (Excel dans notre cas) pour obtenir la distribution de tailles des bulles.

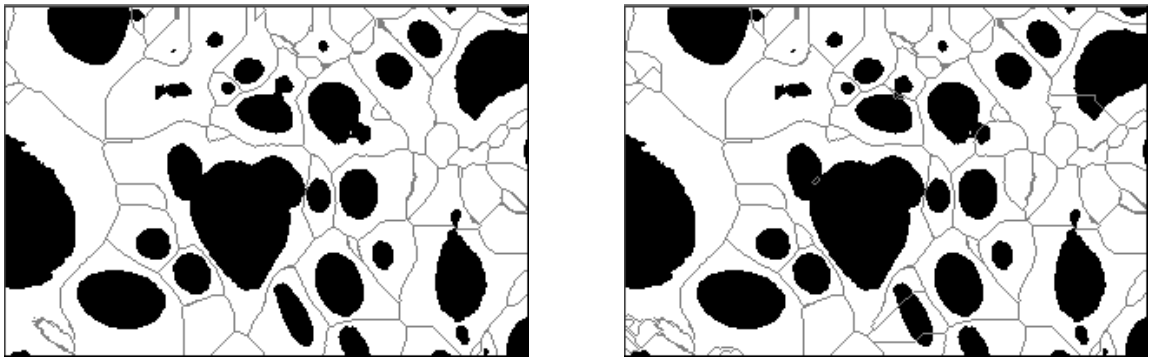
Tout d'abord, nous pouvons calculer le volume réel des bulles car nous avons préalablement calculé le volume représenté par un voxel (voir paragraphe détermination de l'échelle). Il faut ensuite faire un histogramme pour ranger les bulles selon leur volume. Un premier histogramme représente le nombre de bulles par classe de taille, un second représente le volume total occupé par les bulles d'une même classe de taille, et un troisième représente les volumes cumulés (volume total occupé par toutes les bulles de taille inférieure à une certaine taille). C'est ce dernier qui permet de mieux appréhender notre population de bulles. Connaissant la taille de notre échantillon et le volume total de gaz qu'il contient, nous pouvons également obtenir le gonflement du matériau.

Segmentation

Après avoir nettoyé notre image, nous pouvons compter le nombre de bulles et calculer leur volume et leur position. Cela nous permet d'avoir une bonne représentation de la population de bulles dans le matériau. Cependant, une étape supplémentaire nous permettrait d'obtenir plus d'informations et notamment sur le phénomène de coalescence, c'est la segmentation.

La segmentation consiste à séparer numériquement les bulles qui ont coalescé et à les considérer comme des bulles indépendantes. A l'origine, la segmentation a été développée pour compter des grains de café sur une image en noir et blanc. Un calcul simple n'aurait trouvé qu'un seul énorme grain de café. Pour pouvoir les compter, il faut pouvoir

les séparer virtuellement. Pour cela, il nous faut dessiner les frontières entre les grains (existantes dans la réalité mais invisibles sur une image en noir et blanc). Dans notre cas, nous pourrions refaire le calcul du comptage de bulles après segmentation et le comparer à celui effectué avant segmentation. Nous obtiendrions ainsi par soustraction le nombre de bulles ayant coalescé. Cette information nous aiderait à quantifier ce phénomène, que l'on sait présent car nous le constatons visuellement sur les images.



(a) Faible segmentation (b) Forte segmentation

FIGURE 1.5 – Images segmentées

La segmentation sur des images 3D peut fonctionner, mais elle est difficile à mettre en place. Dans notre cas, nous obtenons une sur-segmentation (des bulles ne devant par être segmentées le sont) en certains endroits, simultanément avec une sous-segmentation (des bulles devant être segmentées ne le sont pas) en d'autres endroits. Comme nous pouvons le voir sur la figure 1.5, pour 2 niveaux de segmentation différents, nous segmentons des zones qui ne le nécessitent pas tandis que des bulles accolées devant être segmentées ne le sont pas. Quel que soit le niveau de segmentation désiré, d'importantes erreurs sont constatées. Cela est dû au fait que nous avons une forte dispersion de taille de bulles. Dans le cas où les bulles auraient des tailles relativement proches les unes des autres, nous pourrions facilement mettre en place la segmentation. De plus, le fait que nos bulles soient de forme non sphérique accentue un peu plus la difficulté de la segmentation. Elle ne sera donc pas exploitée dans ce travail. La quantification de la coalescence ne pourra pas être réalisée à partir des images de tomographie dans le cas présent de populations de bulles très hétérogènes en taille et en forme.

1.1.3 Résultats

Les résultats présentés dans cette section proviennent d'échantillons d'enrobé STE3 irradié à 1MGy à un débit de dose de $5000\,\mathrm{Gy\,h^{-1}}$ et d'un enrobé STE3 irradié à 1MGy à un débit de dose de $400\,\mathrm{Gy\,h^{-1}}$. Ces échantillons possèdent des populations de bulles très différentes et, pour cette raison, il a été difficile de choisir les classes de taille de bulles à prendre pour établir les histogrammes. Finalement, le choix s'est porté sur une évolution exponentielle des tailles définissant les classes.

Il est important de noter que les résultats présentés ici ont été obtenus à partir de petites images 3D (300*200*300 voxels) prises au centre des béchers (l'échantillon analysé est représenté en bleu sur la figure 1.6). En effet, pour des raisons de puissance et de mémoire nécessaires, il n'a pas été possible d'effectuer les calculs sur une image représentant un bécher entier. Cela induit des biais, notamment pour les échantillons irradiés à 5000 Gy h^{-1}. En effet, avec ce fort débit de dose, des bulles très grosses (mais peu nombreuses) cohabitent avec de nombreuses petites bulles. Selon l'endroit où l'on se place dans le bécher, on pourra trouver ou non une énorme bulle, ce qui aura pour effet une grande variabilité des résultats. Pour limiter cela, des analyses ont été menées en divers endroits de l'échantillon et les résultats présentés ici représentent la moyenne de ces analyses. Ce biais est cependant négligeable pour les échantillons irradiés à un débit de dose de 400 Gy h^{-1}, car les bulles sont de taille plus homogène et mieux réparties dans l'échantillon. Les résultats présentent donc une bonne fiabilité pour les échantillons à faible débit de dose, tandis qu'ils sont à interpréter avec plus de précaution pour les forts débits de dose.

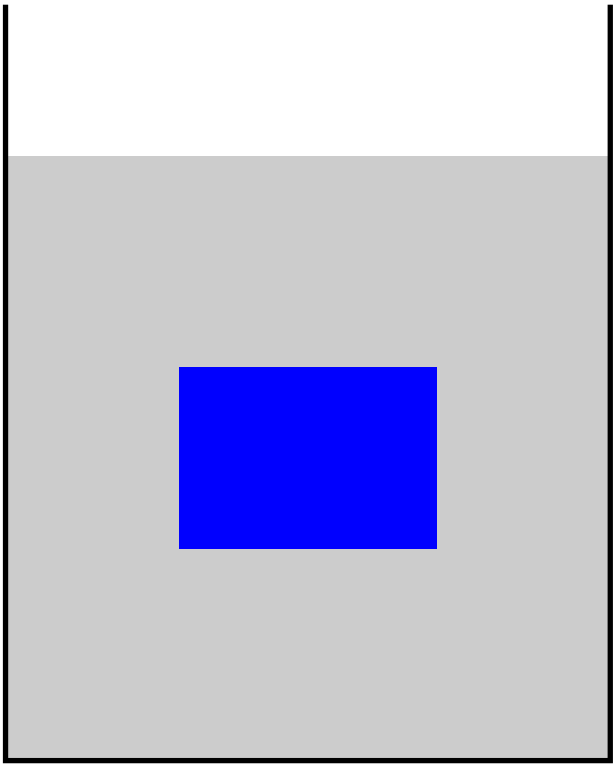
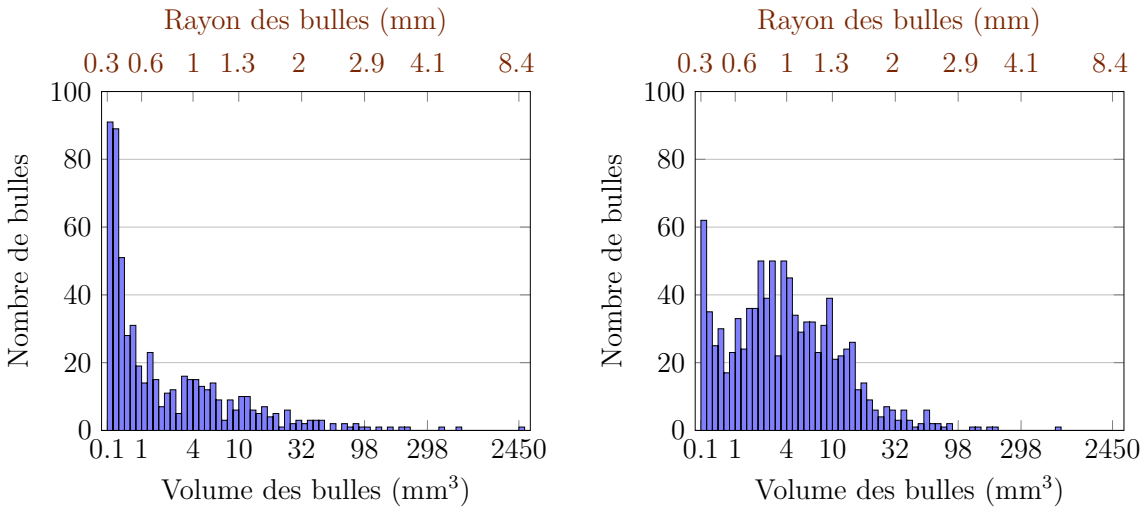


FIGURE 1.6 – Représentation de l'échantillon analysé dans le bécher

Nombre de bulles par classe de taille

Les deux histogrammes de la figure 1.7 nous montrent qu'une augmentation du débit de dose entraîne une diminution du nombre total de bulles (environ 600 bulles pour 5000 Gy/h contre 875 pour 400 Gy/h dans l'échantillon analysé). De plus, la majorité des bulles pour un fort débit de dose sont très petites et l'on remarque la présence d'une grosse bulle de 16,8 mm de diamètre, non constatée pour le faible débit de dose. En effet, à 400 Gy/h,



(a) Débit de dose 5000 Gy h^{-1} (b) Débit de dose 400 Gy h^{-1}

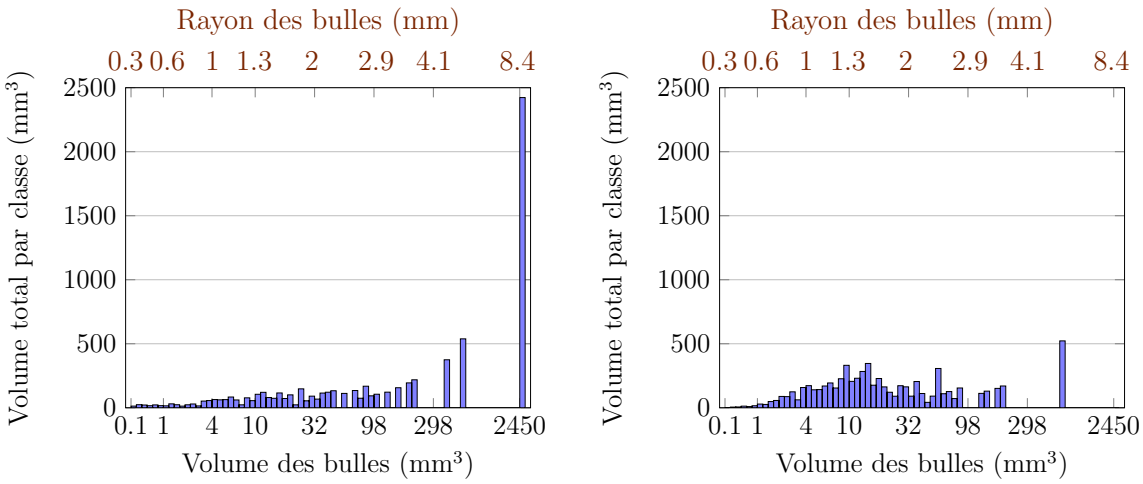
FIGURE 1.7 – Nombre de bulles par classe de taille pour une dose intégrée de 1 MGy

la plus grosse bulle a un diamètre de 9 mm, ce qui représente un volume 6 fois plus faible.

Cette grosse bulle isolée constatée dans le cas du débit de dose à 5000 Gy/h rend les statistiques difficiles à interpréter. On ne peut pas savoir si cette bulle est exceptionnelle (concours de circonstances) ou si ce fort débit de dose mène toujours à la présence de grosses bulles isolées. En revanche, ces statistiques nous permettent de confirmer objectivement l'impression de chaos constaté visuellement à fort débit de dose en comparant les figures 1.1.

Volume total des bulles par classe de taille

Sur la figure 1.8, nous remarquons que, pour un fort débit de dose, la majorité du gaz est contenue dans quelques grosses bulles (dont une grande partie dans une énorme bulle), les petites bulles ne représentant qu'une faible partie du gaz total. Au contraire, toujours sur la figure 1.8, nous constatons que, pour un faible débit de dose, le gaz est majoritairement contenu dans les bulles de taille moyenne. On note la présence d'une grosse bulle, mais elle est nettement moins volumineuse que dans le cas du fort débit de dose. L'augmentation du débit de dose semble donc mener à un régime chaotique.



(a) Débit de dose 5000 Gy h^{-1} (b) Débit de dose 400 Gy h^{-1}

FIGURE 1.8 – Volume total des bulles par classe de taille pour une dose intégrée de 1 MGy

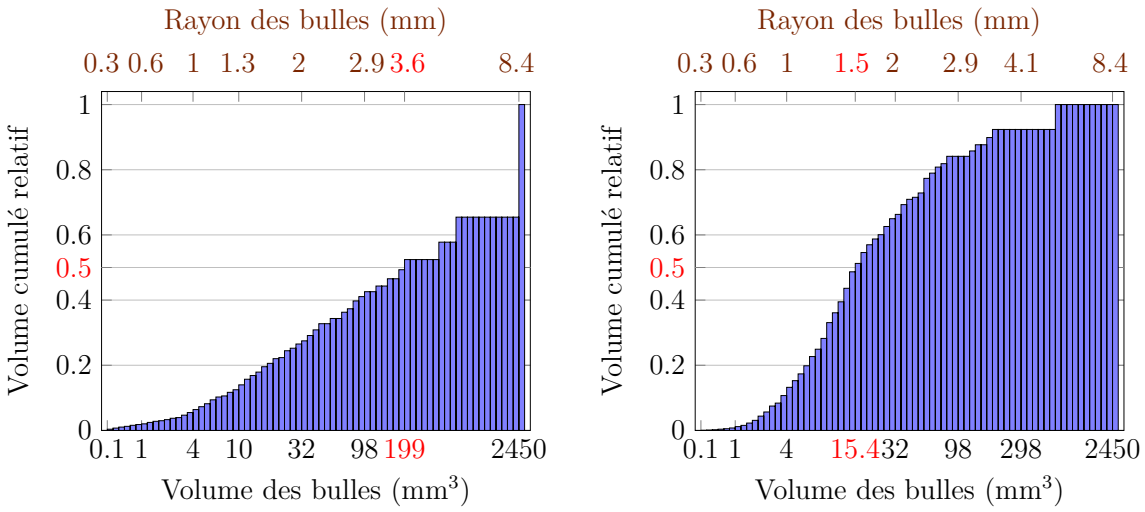
Volumes cumulés des bulles

La figure 1.9 représente les volumes cumulés, c'est-à-dire le volume de gaz contenu dans l'ensemble des bulles de taille inférieure à la taille considérée. Ce graphique met en évidence le fait que le gaz est assez bien réparti dans les bulles de taille moyenne pour l'échantillon à faible débit de dose, tandis qu'il est majoritairement contenu dans les grosses bulles pour l'enrobé fortement irradié. Par exemple, pour avoir 50% du volume total de gaz dans l'échantillon irradié à un débit de dose de 5000 Gy h^{-1}, il nous faut prendre toutes les bulles de taille inférieure à 199 mm, tandis qu'il nous faut prendre les bulles de taille inférieure à 15,4 mm dans le cas de l'échantillon irradié à un débit de dose de 400 Gy h^{-1}.

1.1.4 Conclusions

Les analyses des images de microtomographie ne nous permettent malheureusement pas de tirer de conclusion sur l'importance du phénomène de coalescence des bulles dans un enrobé irradié. Néanmoins, elles nous ont permis d'observer une tendance sur l'influence du débit de dose. Il semblerait qu'une forte augmentation du débit de dose (5000 Gy/h) mène à un régime chaotique (bulles de taille hétérogène et de forme aléatoire) tandis qu'un débit de dose plus faible (400 Gy/h) conduit à une population de bulles de tailles homogènes et de forme sphérique. Cette information nous est précieuse pour l'élaboration de notre modèle de gonflement dans lequel nous ferons l'hypothèse que les bulles sont sphériques. En effet, notre but est de modéliser le cas réel d'un fût contenant un spectre radioactif ayant un débit de dose inférieur ou égal à 10 Gy/h.

Il est par ailleurs impossible, en se basant sur ces observations uniquement, d'établir de tendance quant à l'impact du débit de dose sur le gonflement. Une augmentation du débit de dose signifie une augmentation de la quantité de gaz produite par unité de temps, donc potentiellement du gonflement. Mais, en parallèle, on observe la présence de plus grosses



(a) Débit de dose 5000 Gy h^{-1}

(b) Débit de dose 400 Gy h^{-1}

FIGURE 1.9 – Volumes cumulés des bulles pour une dose intégrée de 1 MGy

bulles dans le cas d'un fort débit de dose, ce qui implique une évacuation plus rapide du gaz. En effet, la vitesse des bulles étant proportionnelle au carré de leur rayon [6], pour une même quantité totale de gaz, quelques grosses bulles conduiront à une plus forte évacuation de gaz par migration que beaucoup de petites. Une étude de l'influence du débit de dose sur le gonflement est présentée au chapitre 4. Par ailleurs, d'autres essais de microtomographie aux rayons X seraient nécessaires pour différentes conditions d'irradiations.

1.2 Observations par microscopie électronique à balayage environnementale

Cette partie est consacrée à l'analyse des observations de différents enrobés bitumineux à l'aide d'un microscope électronique à balayage environnemental. L'objectif de ces observations est d'obtenir des informations sur la localisation d'éventuels sites privilégiés de germination. Cette information serait d'une grande utilité pour calculer l'évolution d'une population de bulles, car elle nous permettrait de connaître leur localisation originale. A partir de cela, il nous serait plus aisé de prévoir le comportement des bulles, grâce à des considérations mécaniques (croissance, migration).

Les sels renferment les radionucléides émetteurs des rayonnements responsables de la radiolyse du bitume. Leur localisation et leur répartition dans l'enrobé nous indiquent donc directement si la création de gaz dans le bitume est homogène en volume ou si des zones voient une génération de gaz plus importante que d'autres. Nous avons d'abord réalisé des observations sur des enrobés contenant des monosels de sulfate de baryum ($BaSO_4$) et de nitrate de sodium ($NaNO_3$) car ces deux sels sont largement majoritaires dans l'enrobé industriel STE3. Ils représentent à eux deux environ 83% de la quantité massique de sels.

La principale différence entre ces deux types de sels est leur solubilité dans l'eau : les sels $BaSO_4$ sont insolubles tandis que les sels $NaNO_3$ sont solubles. Cette différence peut avoir une importance sur leur répartition dans la matrice car ils sont contenus dans une boue saline à base d'eau avant d'être incorporés dans le bitume. La taille et la forme de ces sels diffèrent également, ce qui a des conséquences sur la rhéologie du matériau. Les observations d'un bi-sel $NaNO_3$-$BaSO_4$ seront ensuite présentées et, enfin, nous étudierons le cas d'un enrobé type contenant des sels issus de la Station de Traitement des Effluents STE3 (cas réel).

1.2.1 Dispositif

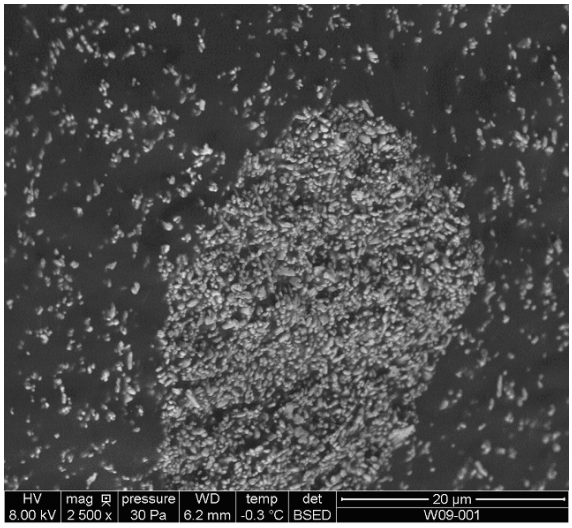
Les observations ont été menées sur un microscope électronique à balayage environnemental de type FEI QUANTA 200 ESEM FEG à l'ICSM [7]. Il est équipé d'un analyseur EDX (BRUKER XFlash® 5010 SDD). C'est un spectromètre sélectif en énergie permettant l'identification d'éléments chimiques, ce qui nous a permis de réaliser des microanalyses qualitatives et quantitatives pour déterminer la nature des sels observés. Après avoir identifié les différents sels, nous avons obtenu des images par contraste chimique pour observer leur répartition dans la matrice. Cette méthode consiste à bombarder l'échantillon avec un faisceau d'électrons et analyser les électrons rétrodiffusés. Nous avons également pris des images du relief de notre échantillon, grâce à l'analyse des électrons secondaires. Les observations ont été réalisées sous une tension d'accélération de 15 kV et avec une pression dans la chambre du microscope comprise entre 30 et 100 Pa selon les échantillons. Le MEB étant équipé d'une platine à effet Peltier, nous avons maintenu l'échantillon à une température proche de 0 °C pour figer le bitume.

1.2.2 Enrobé contenant des monosels $BaSO_4$ ou $NaNO_3$

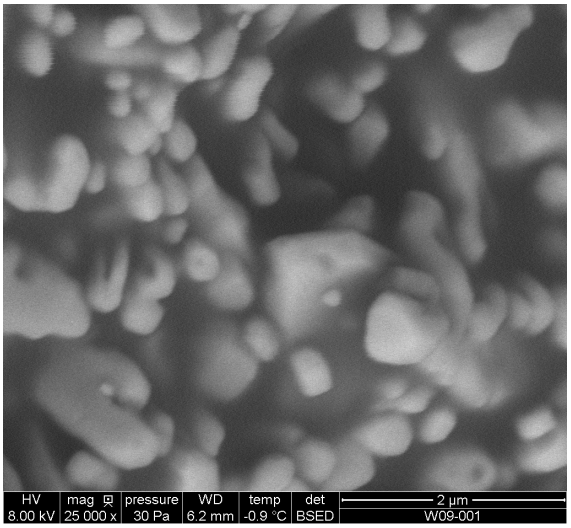
Dans la matrice bitume, les sels $BaSO_4$ forment des agglomérats d'une vingtaine de microns (figure 1.10). En dehors de ces agglomérats, on observe une excellente dispersion des sels dans la matrice bitume. Les cristallites de $BaSO_4$ ont une taille de l'ordre d'une centaine de nm.

Comme pour les sels $BaSO_4$, les sels $NaNO_3$ présentent une excellente compatibilité avec la matrice bitume et vont être parfaitement intégrés dans celle-ci (figure 1.11). Toutefois, les sels $NaNO_3$ peuvent prendre des formes très aléatoires. Parfois, ce sont des cristaux cubiques ; parfois, des grains de forme complexe, présentant des porosités, voire des trous ; et parfois ce sont des grains sans forme précise. Leur taille varie d'une dizaine à une cinquantaine de microns. Il faut noter que, ces sels étant solubles, ils recristallisent pendant la fabrication de l'enrobé et la structure finale dépend donc étroitement des conditions de procédé.

7. Institut de Chimie Séparative de Marcoule



(a) Grossissement 2500 fois



(b) Grossissement 25000 fois

FIGURE 1.10 – Images de sels $BaSO_4$ obtenues au MEB environnemental par contraste chimique

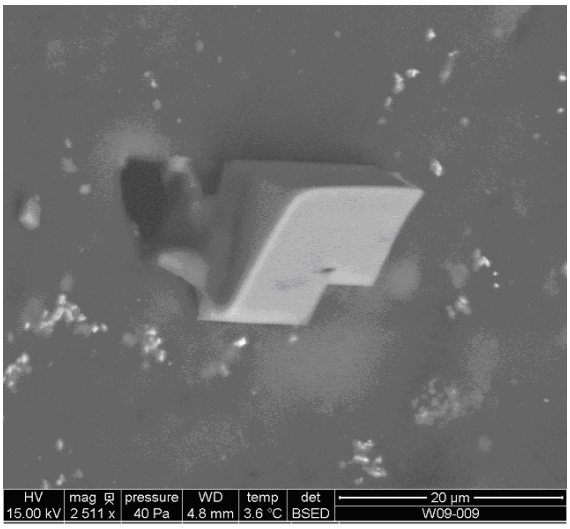
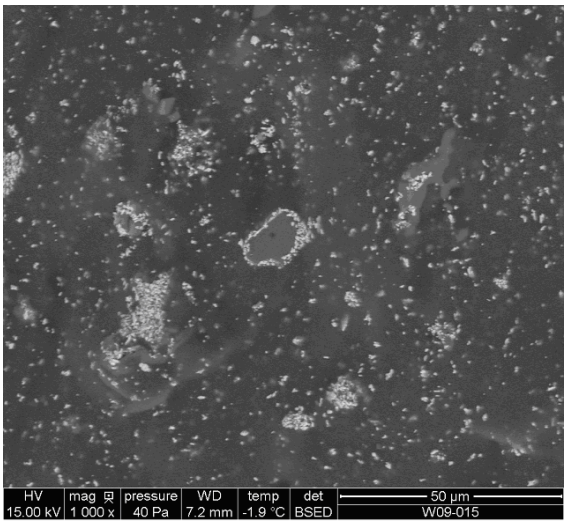


FIGURE 1.11 – Image d'un sel $NaNO_3$ obtenue au MEB environnemental par contraste chimique, grossissement 2500 fois

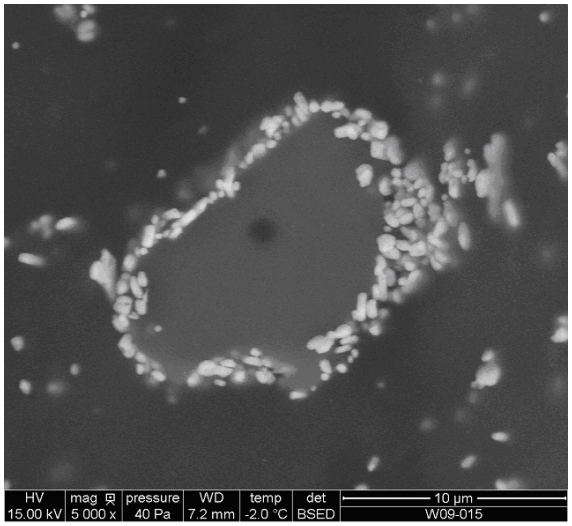
1.2.3 Enrobé contenant du bi-sel $BaSO_4$-$NaNO_3$ [8]

Dans l'enrobé bi-sel, on constate une agglomération des sels $BaSO_4$ autour de grains $NaNO_3$. La conséquence de cela est que la densité de grains $BaSO_4$ dans la matrice bitume en dehors des agglomérats est plus faible que pour le monosel $BaSO_4$, ceux-ci étant fortement concentrés sur des sels $NaNO_3$ (figure1.12).

8. Dans l'enrobé bi-sel, les proportions massiques sont $\frac{2}{3}$ de $BaSO_4$ et $\frac{1}{3}$ de $NaNO_3$



(a) Grossissement 1000 fois



(b) Grossissement 5000 fois

FIGURE 1.12 – Images du bi-sel $BaSO_4$-$NaNO_3$ obtenues au MEB environnemental par contraste chimique

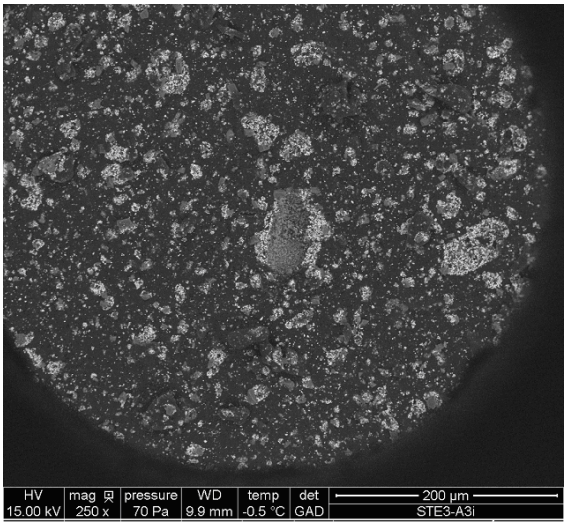
1.2.4 Enrobé industriel STE3

Dans l'enrobé industriel STE3, les sels sont en grande partie regroupés en amas dont les tailles vont d'une dizaine à une cinquantaine de microns (figure 1.13). La totalité des différents sels présents dans la composition de la boue STE3 (sulfate de baryum $BaSO_4$, nitrate de sodium $NaNO_3$, précipité préformé de ferrocyanure de nickel PPFeNi, et sulfure de cobalt CoS) est retrouvée dans les agglomérats. Les sels majoritaires sont le $BaSO_4$, apparaissant en gris clair, et le $NaNO_3$, apparaissant en gris un peu plus foncé. Les sels minoritaires sont retrouvés dans les agglomérats, sans pour autant pouvoir les positionner précisément à cause de leur faible proportion. Seule une faible proportion des sels est finement dispersée dans la matrice bitume. On constate que les agglomérats sont bien répartis dans la matrice bitume et sont éloignés d'une vingtaine de microns en moyenne. Leur répartition dans la matrice est relativement homogène compte tenu de leur taille.

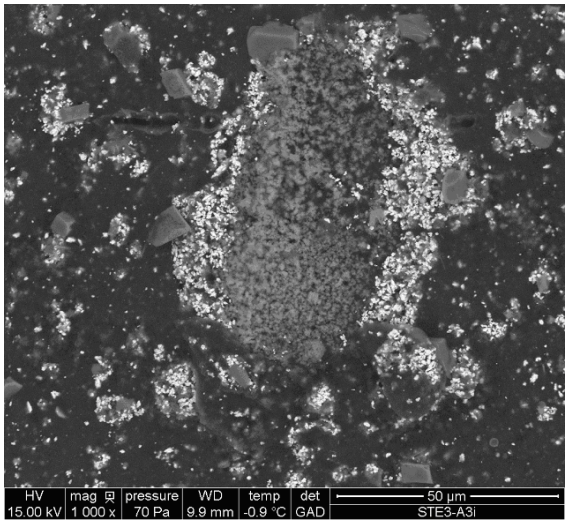
Dans cet enrobé, on a localement des zones de forte population en sels et des zones appauvries. Cependant, les éléments radioactifs emprisonnés dans les sels ont une portée de rayonnement supérieure à une quarantaine de microns (distance supérieure à la distance moyenne inter agglomérats), ce qui signifie que la matrice sera tout de même irradiée de manière uniforme en volume. On aura ainsi une concentration en gaz dissous homogène dans le bitume. Cette répartition des sels nous permet donc a priori de dire qu'il n'y a pas de sites de germination privilégiés.

Les images observées pour l'enrobé STE3 irradié à 7MGy sont comparables à celles obtenues pour l'enrobé non irradié (figures 1.13 et 1.14). La dose absorbée par le matériau ne semble pas à première vue avoir d'influence sur la répartition des sels et la taille des agglomérats. A l'instar des images prises pour des doses d'irradiation inférieures, les images

obtenues pour 7 MGy nous montrent ainsi une agglomération des sels et une répartition des agglomérats relativement homogène (à l'échelle de notre problématique : les éléments radioactifs ont des champs d'action de 40 microns au minimum) dans la matrice bitume. On retrouve ici également la présence de tous les sels du composé STE3 dans les agglomérats.

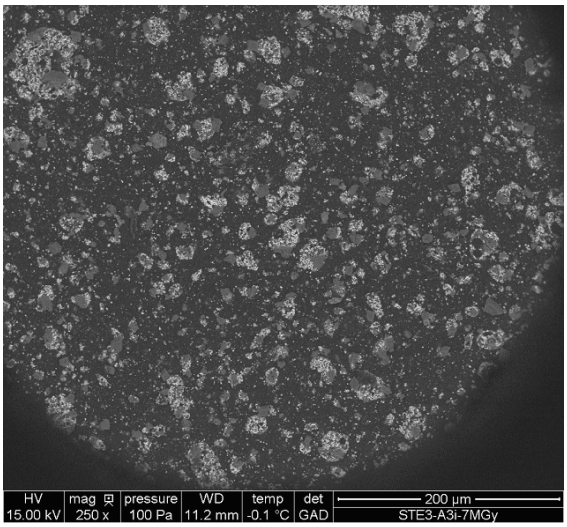


(a) Grossissement 250 fois

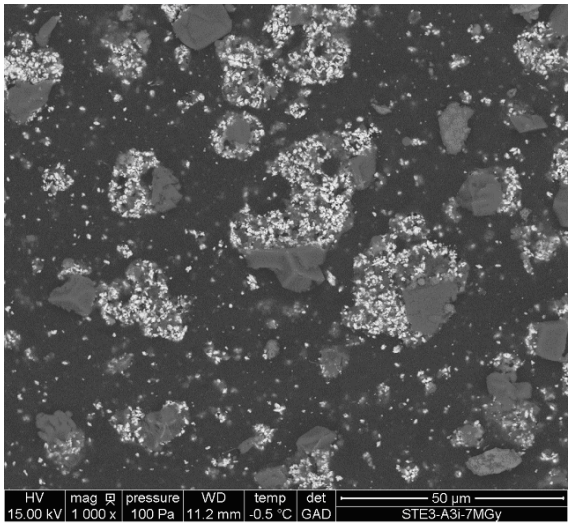


(b) Grossissement 1000 fois

FIGURE 1.13 – Images de l'enrobé STE3 non irradié obtenues au MEB environnemental par contraste chimique



(a) Grossissement 250 fois



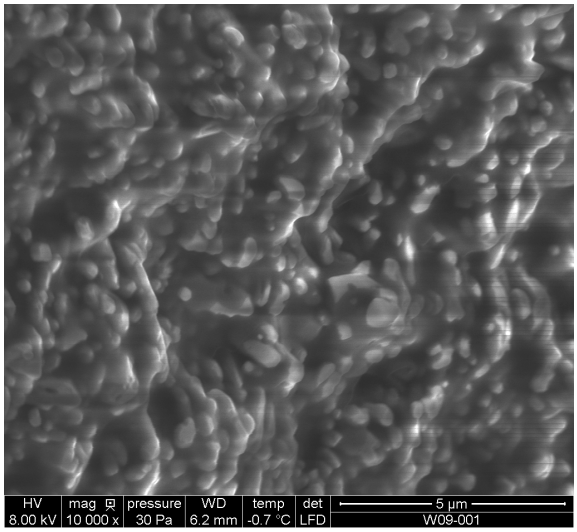
(b) Grossissement 1000 fois

FIGURE 1.14 – Images de l'enrobé STE3 irradié à 7MGy obtenues au MEB environnemental par contraste chimique

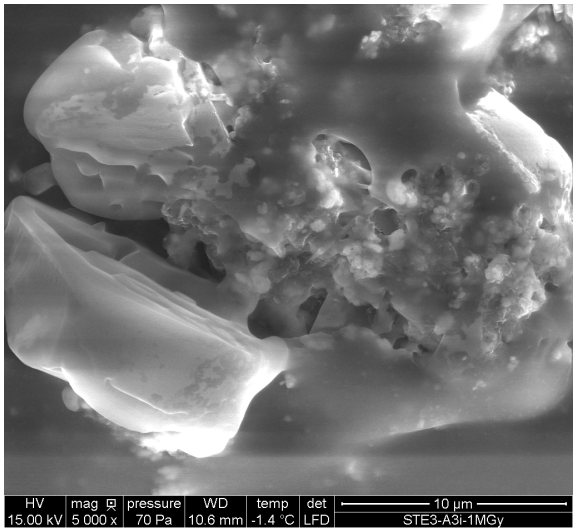
1.2.5 Relief de l'échantillon

Nous avons réalisé des images par analyse des électrons secondaires dans le but d'observer le relief de l'échantillon et de pouvoir appréhender la qualité de mouillage des sels par l'enrobé (figure 1.15). Quelle que soit la nature des sels présents, ils sont très bien incorporés dans la matrice. Sur la figure 1.15b, nous pouvons observer des sels $BaSO_4$ incorporés dans le bitume, ainsi que deux cristaux $NaNO_3$ (apparaissant en clair sur la gauche de l'image), l'ensemble de ces sels formant un agglomérat.

Le bitume semble avoir une bonne compatibilité chimique avec les sels, car il les recouvre très bien : on observe un bon mouillage. Cela nous permet d'émettre l'hypothèse qu'il n'y a pas de bulles d'air emprisonnées dans les sels, ou entre les sels et le bitume. Si tel avait été le cas, ces bulles auraient constitué des sites privilégiés pour l'apparition et la croissance de bulles de dihydrogène. Ces observations nous permettent donc de dire qu'il n'y a pas de localisation privilégiée des bulles de gaz par suite de l'irradiation.



(a) Monosel $BaSO_4$, grossissement 10000 fois



(b) Enrobé STE3 irradié à 1MGy, grossissement 5000 fois

FIGURE 1.15 – Images obtenues au MEB environnemental par analyse des électrons , relief de l'échantillon

1.2.6 Discussion

A partir de ces observations, il semblerait que la dose d'irradiation reçue par le matériau n'ait aucun impact sur la répartition des sels aux échelles mésoscopiques (de l'ordre de la centaine de µm) et macroscopique (de l'ordre du cm). Pour la répartition des sels majoritaires ($BaSO_4$ et $NaNO_3$), l'irradiation n'a pas de conséquence. On observe toujours des agglomérats de sels $BaSO_4$ autour de grains $NaNO_3$, quelle que soit la dose d'irradiation. De même, la taille des agglomérats et la distance qui les sépare ne semblent pas non plus influencées par la dose reçue.

L'agglomération des sels peut avoir une conséquence : une baisse de la production de dihydrogène dans le bitume. En effet, la création de gaz s'effectue en cassant des liaisons carbone-hydrogène dans les chaînes de bitume grâce à l'énergie apportée par les rayonnements α, β et γ. La création de gaz sera d'autant plus grande que le rayonnement reçu par le bitume sera important. Dans le cas d'agglomération de sels, la radioactivité est en partie neutralisée : le rayonnement émis par les particules actives situées au centre de l'agglomérat va être partiellement absorbé par les particules voisines, donc par des sels et non par du bitume (dans le cas de rayonnements α et β [9]). Néanmoins, au sein des agglomérats de sels, on constate que les sels sont liés entre eux par une couche de bitume qui constitue le ciment de ces regroupements. L'hypothèse qu'une partie du rayonnement serait absorbée par les sels dans les agglomérats est donc discutable et, par la suite, nous supposerons que la totalité de l'énergie produite par les radionucléides est reçue par le bitume. Ceci est en accord avec notre volonté d'avoir un modèle de gonflement plutôt majorant.

9. Le parcours dans le bitume est de 40 µm et 500 µm respectivement pour les rayonnements α et β. Par contre, le rayonnement γ traverse tout l'échantillon et donc toute la masse de bitume est radiolysée

Ces observations nous permettent donc de supposer qu'il n'y a pas de sites privilégiés pour la germination. On aurait pu avoir une telle information si nous avions constaté la présence d'inclusions d'air (qui auraient été mises en évidence par la présence de trous en forme de calotte sphérique au niveau de l'interface sels-bitume par exemple), ou si la taille des agglomérats et la distance inter-agglomérats étaient grandes devant la portée de rayonnement des nucléides. Celle-ci étant de l'ordre d'une cinquantaine de µm, alors que les agglomérats sont en moyenne espacés d'une vingtaine de µm, on ne peut donc pas tirer de conclusion sur la localisation des sites de germination dans le matériau. Par la suite, on fera donc l'hypothèse que le bitume est irradié de manière uniforme et que la concentration en gaz dissous dans le bitume est homogène en volume. Par conséquent, le modèle de gonflement que nous développerons sera en champ moyen (pas de prise en compte de différences de concentrations locales en gaz dissous).

Nous pouvons également tirer une autre conclusion de cette répartition des sels dans la matrice, concernant la migration des bulles. Nous avons vu que les sels étaient regroupés en agglomérats pouvant atteindre une taille d'une cinquantaine de µm. Nous pouvons alors nous poser la question de savoir si ils peuvent constituer des obstacles pour les bulles en mouvement induit par poussée d'Archimède, modifiant ainsi leur vitesse ou leur trajectoire. Un calcul rapide à partir de la vitesse ascensionnelle d'une bulle (supposée en régime de Hadamard-Rybczynski, développé en fin de ce chapitre) et de la hauteur du fût nous indique qu'une bulle de diamètre égal à 600 µm mettrait plus de 10 ans à parcourir la totalité de la hauteur du fût, tandis qu'une bulle de diamètre égal à 2 mm parcourrait le fût en moins d'un an. Comme nous avons pu l'observer avec les images de micro tomographie aux rayons X, les bulles peuvent aisément atteindre des diamètres de plusieurs mm. Par rapport à de telles bulles, une bulle de 600 µm a donc une vitesse ascensionnelle très faible et ne représente qu'une infime partie de l'évacuation de gaz par migration. Elle est pourtant déjà dix fois plus volumineuse qu'un gros agglomérat de sels et donc peu perturbée par sa présence. Par la suite, nous ferons l'hypothèse que l'enrobé est vu comme un continuum par les bulles et nous ne tiendrons pas compte de la présence d'agglomérats de sels pour la migration.

1.3 Paramètres matériaux et mécanismes mis en jeu

1.3.1 Piégeage de l'hydrogène par le sulfure de cobalt

Les fûts de déchets radioactifs ne contiennent pas tous les mêmes sels, les mêmes quantités de sels et dans les mêmes proportions. La composition des enrobés bitumineux dépend notamment de leur provenance (station de traitement des effluents) et de la période durant laquelle ils ont été produits. Ainsi, après plusieurs années d'entreposage, le gonflement de certains fûts a été constaté. Il s'est avéré que certaines compositions de sels comportaient des sulfures de cobalt et d'autres non. Suite à ce constat, l'effet du piégeage du dihydrogène par ce composé a été étudié [12].

Il existe plusieurs types de sulfure de cobalt. Celui qui a été utilisé comme sel de coprécipitation est l'hydroxosulfure de cobalt, de formule chimique CoSOH. L'effet du cobalt sur le piégeage du dihydrogène a été mis en évidence grâce à l'activation du cobalt par les nitrates [13, 14, 15]. Plusieurs hypothèses ont été formulées quant au mécanisme responsable de l'inhibition de la production de dihydrogène ou de son piégeage. Il a été proposé [16] que l'hydroxosulfure de cobalt inhibe la formation de l'hydrogène moléculaire en piégeant les radicaux créés par les rayonnements ionisants, évitant ainsi les réactions de propagation qui conduisent à la production d'H_2. Néanmoins, cette hypothèse a été invalidée [12] et il a été montré que la production de dihydrogène n'était pas affectée par la présence de CoSOH, mais que le gaz produit était piégé par simple réaction chimique, ce piégeage induisant la production d'eau et d'un composé solide qui se forme par mécanisme de germination-croissance :

$$9\,\mathrm{CoSOH} + \frac{11}{2}\mathrm{H_2} \longrightarrow \mathrm{Co_9S_8} + 9\,\mathrm{H_2O} + \mathrm{H_2S}$$

La capacité maximale de piégeage de dihydrogène par l'hydroxosulfure de cobalt est de 0,59 ± 0,18 mole d'hydrogène par mole de cobalt [17]. C'est cette valeur que nous prendrons dans le modèle de gonflement.

Pour limiter le gonflement des fûts, il a été décidé de rajouter de l'hydroxosulfure de cobalt dans les enrobés bitumineux, de manière à piéger une certaine quantité de gaz produit. Connaissant le spectre radioactif initial d'un fût, il est aisé de connaitre la quantité de CoSOH à ajouter pour piéger le dihydrogène produit pendant une période définie. Ainsi, pour certains fûts, il a été prévu de piéger le gaz produit pendant une période pouvant aller jusqu'à 150 ans, ce qui induit un retard de gonflement. Ce paramètre sera pris en compte dans notre modèle de gonflement et les conséquences de ce piégeage sur le gonflement maximal seront discutées.

1.3.2 Solubilité et coefficient de diffusion du dihydrogène dans l'enrobé

La solubilité du dihydrogène dans le bitume est une grandeur primordiale dans l'élaboration du modèle de gonflement. Elle correspond à la quantité de gaz qui va pouvoir être stockée dans les volumes libres du matériau et s'exprime comme une concentration massique. Lorsque la concentration en gaz dans le bitume dépasse cette valeur, on dit que le matériau est saturé et cela nous amène à introduire la notion de sursaturation, qui correspond à l'excès de concentration par rapport à la limite de solubilité. Passée cette limite, des bulles vont commencer à germer avec une cinétique liée à la sursaturation et un gonflement va apparaître.

Un autre paramètre physique important pour notre travail de modélisation est le coefficient de diffusion du dihydrogène dans le bitume. Cette grandeur s'exprime en $\mathrm{m^2\,s^{-1}}$, elle quantifie en quelque sorte la vitesse de propagation du gaz à travers la matrice par

diffusion. Ce coefficient sera utile dans notre cas pour déterminer la vitesse d'approvisionnement en gaz des bulles, car celles-ci vont se nourrir du gaz dissous dans la matrice et ce dernier va devoir cheminer jusqu'aux bulles par diffusion.

La solubilité et le coefficient de diffusion peuvent être déterminés lors de la même expérience qui consiste à faire passer du gaz à travers la matrice de bitume. La mesure consiste à déterminer la quantité de dihydrogène diffusée à travers le bitume. Cela est réalisé à l'aide d'une cellule de diffusion, comportant deux compartiments de même dimension séparés par une couche de bitume d'épaisseur définie. Le compartiment amont contient une quantité finie de dihydrogène à une pression donnée, tandis que le compartiment aval contient de l'azote à la même pression que le compartiment amont et est relié à une chromatographie en phase gazeuse. Le suivi par chromatographie au cours du temps permet de connaître la quantité de dihydrogène qui a traversé le bitume et ainsi d'en déduire un débit. On calcule ensuite le coefficient de diffusion à partir du débit observé et de l'épaisseur de bitume traversé.

La solubilité est quant à elle déterminée à l'issue de la mesure de diffusion. On connaît la quantité initiale de gaz contenue dans le compartiment amont, la quantité de gaz restante dans ce compartiment à la fin de la mesure et la quantité de gaz ayant traversé l'échantillon (gaz présent dans le compartiment aval à l'issue de la mesure). En soustrayant les 2 quantités de gaz restantes dans les deux compartiments à la quantité initiale contenue dans le compartiment amont, on obtient la quantité de gaz restant dans l'échantillon. Connaissant le volume de l'échantillon de bitume, il est aisé de déterminer la concentration du gaz dans la matrice, ce qui correspond à la solubilité.

Les caractérisations des couples bitume - dihydrogène et enrobé bitumineux - dihydrogène en termes de solubilité et de coefficient de diffusion ont été menées au CEA de Marcoule par Akou [18]. L'influence de l'irradiation a été étudiée et les résultats montrent que ces deux paramètres ne sont influencés ni par la dose reçue, ni par le débit de dose. Cependant, on note une différence entre les valeurs obtenues pour le bitume pur et pour l'enrobé bitumineux. La présence de sels semble donc avoir une influence sur la diffusion. Le coefficient de diffusion du dihydrogène vaut $1{,}5 \times 10^{-10}\,\mathrm{m^2\,s^{-1}}$ dans le bitume pur et $5 \times 10^{-11}\,\mathrm{m^2\,s^{-1}}$ dans l'enrobé bitumineux. La solubilité du dihydrogène vaut environ 5% volumique dans le bitume pur, ce qui représente une concentration massique de $4{,}5\,\mathrm{g\,m^{-3}}$, et 3% volumique dans l'enrobé, ce qui représente une concentration massique de $2{,}7\,\mathrm{g\,m^{-3}}$. Ces valeurs alimenteront notre modèle de gonflement.

1.3.3 Radio-oxydation du bitume en surface

Le bitume est composé à plus de 90% de carbone et d'hydrogène. Il comporte également du soufre en quantité non négligeable (4%) tandis que sa teneur en oxygène est faible (0,53%) [5]. Cela lui offre un caractère sensible à l'oxydation et ce phénomène est rendu possible dans la réalité car, les fûts n'étant pas hermétiques, l'oxygène présent dans l'air est en contact avec le bitume en surface du fût. Mouazen a quantifié l'influence de l'oxydation du bitume sur son comportement rhéologique. Pour cela, il a irradié des échantillons de

bitume à 3 doses différentes (1, 2 et 4 MGy) et il a ensuite fait la caractérisation rhéologique de ces échantillons en 3 endroits distincts : au fond, au milieu et en surface de l'échantillon. Pour chaque dose reçue, les résultats sont superposables pour le fond et le milieu de l'échantillon, tandis qu'à partir d'une dose de 2 MGy, il a constaté une élévation de la viscosité en surface de l'échantillon. Cette différence est considérable et augmente avec la dose reçue. Pour 2 MGy, la viscosité en surface est 3,5 fois supérieure à celle à cœur du matériau et, pour 4 MGy, elle est 15 fois supérieure à celle à cœur [19].

Cette forte augmentation de la viscosité en surface peut être vue comme un durcissement du bitume. On est en présence d'une croûte de bitume en surface du fût. Cette variation de viscosité n'est cependant constatée que sur une faible épaisseur (inférieure à 1 cm), car la diffusion de l'oxygène dans le bitume est très limitée [20]. Cette croûte va avoir pour effet de ralentir les bulles quand elles arrivent en haut du bitume (la vitesse est inversement proportionnelle à la viscosité du fluide [6]) et potentiellement augmenter le gonflement. Cependant, en se durcissant, le bitume devient également plus fragile et cassant. Des phénomènes de fissuration sont alors à prendre en compte, ce qui aurait tendance à limiter le gonflement en facilitant l'évacuation de gaz.

Néanmoins, l'effet de cette croûte sur le gonflement est discutable, car un ralentissement des bulles en surface va conduire à une accumulation de celles-ci, favorisant ainsi la coalescence et donc leur migration. De plus, l'épaisseur de cette croûte (environ 1 cm), est très faible comparée à la hauteur d'un fût et les conséquences macroscopiques sur le gonflement restent donc à évaluer.

1.3.4 Recensement des phénomènes mis en jeu

Dans cette section, nous allons recenser et décrire les différents mécanismes qui régissent le comportement du dihydrogène dans le bitume. L'objectif initial était de tous les intégrer dans le modèle de gonflement développé au cours de cette thèse. Néanmoins, faute de temps, tous n'ont pas pu être approfondis, notamment la coalescence qui fera l'objet d'une étude consécutive à cette thèse. Quant à la germination, il est très difficile d'obtenir des données expérimentales, elle sera modélisée de plusieurs manières car son mécanisme n'est pas parfaitement connu.

Diffusion

La diffusion est un mécanisme naturel qui tend à homogénéiser les concentrations de matière. Elle est la conséquence macroscopique d'un phénomène microscopique : l'agitation thermique. Individuellement, chaque particule de l'espèce diffusante se déplace dans une direction aléatoire. Imaginons deux zones d'un matériau présentant des concentrations en une espèce chimique différentes. Il y a beaucoup de particules dans la zone à forte concentration (nommée zone 1) et, par conséquence, il y aura un nombre considérable de particules qui vont se déplacer en direction de la zone à faible concentration (nommée zone 2). Par contre, dans la zone 2, il y a peu de particules et, par conséquent, très peu de particules qui vont se déplacer dans la direction de la zone 1. Il y a la même proportion

de particules de la zone 2 qui vont dans la direction de la zone 1 que l'inverse. Mais, étant donné qu'il y a dans l'absolu plus de particules dans la zone 1, il y aura plus de particules allant de la zone 1 à la zone 2 que l'inverse. Cela se traduit macroscopiquement par un flux de particules de la zone 1 vers la zone 2, c'est la diffusion.

Ce phénomène est régi par 2 équations appelées les lois de Fick. La première loi énonce que le flux de matière est proportionnel au gradient de concentration (loi analogue à la loi de Fourier pour la conduction de la chaleur) et la seconde est un bilan local de masse : la variation de concentration dans un volume donné est égal à l'opposé du flux total sortant de ce volume.

- première loi de Fick :

$$\overrightarrow{J} = -D \cdot \overrightarrow{grad(c)} \tag{1.1}$$

où J ($\mathrm{kg\,s^{-1}\,m^{-2}}$) est le flux de matière de l'espèce diffusante, D le coefficient de diffusion du couple espèce diffusante - milieu traversé ($\mathrm{m^2\,s^{-1}}$) et c la concentration de l'espèce diffusante dans le milieu($\mathrm{kg\,m^{-3}}$). La concentration est fonction du temps et de l'espace.

- seconde loi de Fick :

$$\frac{\partial}{\partial t}\int\int\int_V c \cdot dV = -\int\int_S \overrightarrow{J} \cdot \overrightarrow{dS} \iff \frac{\partial c}{\partial t} + div(\overrightarrow{J}) = 0 \tag{1.2}$$

où V ($\mathrm{m^3}$) est le volume sur lequel on fait le bilan de masse et S ($\mathrm{m^2}$) est la surface de ce volume.

En combinant ces deux lois, on obtient l'équation de diffusion, qui est analogue à l'équation de la chaleur :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D\Delta c \tag{1.3}$$

Germination

La germination est la naissance des bulles, c'est le début de l'histoire. Cependant, c'est également le mécanisme le moins connu. La germination fait appel à la notion de sursaturation définie précédemment. Cette grandeur représente l'écart à l'équilibre : plus elle est élevée, plus le système est instable. Dans le cas d'un gaz dissous dans une matrice, cette

instabilité se traduit par la difficulté du fluide à maintenir tout le gaz dissous. Lorsque le système est trop instable (forte sur-saturation), la germination peut avoir lieu, c'est une sorte de démixtion locale.

On note l'existence de deux types de germination : homogène et hétérogène [21]. La première consiste à faire germer une bulle par pure sur-saturation, sans déclencheur, tandis que la seconde est une germination aidée par une irrégularité géométrique dans le fluide. Ce peut-être une porosité sur la surface du contenant, une inclusion d'air, la présence d'une poussière... Cette deuxième possibilité nécessite des niveaux de sur-saturation beaucoup moins importants [22] et semble être privilégiée dans notre cas. En effet, l'enrobé bitumineux contient de nombreux sels, de géométries, tailles et porosités très différentes. Même si leur bonne dispersion ne nous permet pas de localiser de sites de germination privilégiés, il est très probable que les bulles se forment à leur surface. Nous ferons donc l'hypothèse que les bulles apparaissent par germination hétérogène et que la sur-saturation reste faible (très inférieure à 1).

La modélisation de la germination revêt une difficulté particulière. Plusieurs approches seront étudiées pour l'intégrer sans le modèle de gonflement. Elles seront présentées dans le chapitre 2 consacré à la modélisation du problème.

Croissance

Nous allons ici brièvement présenter le phénomène de croissance car il sera étudié en détails dans le chapitre 2. Nous nous sommes appuyés sur les travaux de Amon et Denson [23], Rayleigh et Silberman et Plesset [24] [25], et Navon et al. [26] pour appréhender ce mécanisme. Ils ont étudié la croissance de bulles dans le cas de formation d'émulsions et de laves de volcan, respectivement. Une bulle située dans un fluide est soumise à un équilibre de contraintes : une différence de pression entre l'intérieur et l'extérieur de la bulle, une tension de surface et une contrainte visqueuse, qui va réguler sa vitesse de croissance.

Amon et Denson [23] et Navon et al. [26] ont montré que la croissance d'une bulle pouvait être divisée en deux phases. Dans un premier temps, la bulle suit une croissance exponentielle, c'est ce qu'on appelle le régime hydrodynamique. La croissance de la bulle dans cette phase est limitée par la contrainte visqueuse du fluide environnant. Puis, dans un second temps, la bulle suit une croissance en racine carrée du temps, c'est le régime diffusif. Dans ce dernier cas, le facteur limitant la croissance est l'apport de gaz par diffusion de la matrice vers la bulle.

Le détail des équations régissant la croissance d'une bulle ainsi que les solutions asymptotiques des différents régimes associés sont exposés dans le chapitre 2. Ces équations n'étant pas solvables analytiquement, un code de calcul a été développé pour résoudre la croissance.

Mûrissement d'Ostwald

Le mûrissement d'Ostwald est un mécanisme ayant lieu dès lors qu'il y a plusieurs bulles dans le fluide. Il est donc propre au cas d'une population. Il repose sur les lois de Henry et de Laplace. La première indique que, pour une bulle de gaz dans un fluide, la concentration en gaz dissous à l'interface de la bulle est proportionnelle à la pression de gaz dans la bulle :

$$c = Hp_i \tag{1.4}$$

où c ($\mathrm{kg\,m^{-3}}$) est la concentration en gaz dissous dans la matrice à la surface de la bulle, p_i (Pa) est la pression dans la bulle et H ($\mathrm{s^2\,m^{-2}}$) est la constante de Henry, qui dépend du couple gaz - matrice.

La loi de Laplace indique que la pression dans une bulle à l'équilibre mécanique est inversement proportionnelle à son rayon :

$$\Delta p = \frac{2\gamma}{R} \tag{1.5}$$

où Δp (Pa) représente la différence de pression entre l'intérieur et l'extérieur de la bulle, γ ($\mathrm{N\,m^{-1}}$) est la tension de surface et R (m) est le rayon de la bulle.

Ainsi, la loi de Laplace nous indique qu'une grosse bulle aura une faible pression interne, puis, par déduction, la loi de Henry nous indique que cette grosse bulle verra une faible concentration en gaz dissous dans le fluide à son interface (figure 1.16). A l'inverse, une petite bulle aura une forte pression interne et donc une forte concentration en gaz dissous dans le fluide à son interface. Pour deux bulles de tailles différentes dans un même voisinage, la concentration en gaz dissous autour de la grosse bulle sera plus faible que celle autour de la petite. On est donc en présence d'un gradient de concentration dans le fluide qui va engendrer un flux de diffusion de gaz de la petite bulle vers la grosse. D'un point de vue global, les grosses bulles croissent au détriment des petites.

L'équation de Gibbs-Thomson reprend les deux équations précédentes et donne directement la relation entre la taille d'une bulle et la concentration en gaz dissous à son interface. L'équation de Gibbs-Thomson linéarisée est valable dans notre cas pour des bulles d'une taille R supérieure à 3,69 µm [10] :

$$c_R = c_s \cdot exp\left(\frac{2\gamma V_m}{k_B \mathcal{N} T}\frac{1}{R}\right) \simeq c_s\left(1 + \frac{2\gamma V_m}{k_B \mathcal{N} T}\frac{1}{R}\right) \tag{1.6}$$

10. Pour les paramètres physiques du bitume ($T = 275\,\mathrm{K}$, $V_m = 22{,}4\,\mathrm{L\,mol^{-1}}$, $\gamma = 0{,}03\,\mathrm{N\,m^{-1}}$) et en admettant une erreur de 1%

où c_R ($\mathrm{kg\,m^{-3}}$) est la concentration massique en dihydrogène à la surface d'une bulle de taille R (m), c_s ($\mathrm{kg\,m^{-3}}$) est la concentration massique en dihydrogène à la surface d'une bulle de rayon infini (interface plane) : c'est la concentration à saturation, k_B ($\mathrm{m^2\,kg\,s^{-2}\,K^{-1}}$) la constante de Boltzmann, $\mathcal{N}$ ($\mathrm{mol^{-1}}$) le nombre d'Avogadro, T la température (K) et V_m ($\mathrm{m^3\,mol^{-1}}$) le volume molaire moyen du gaz.

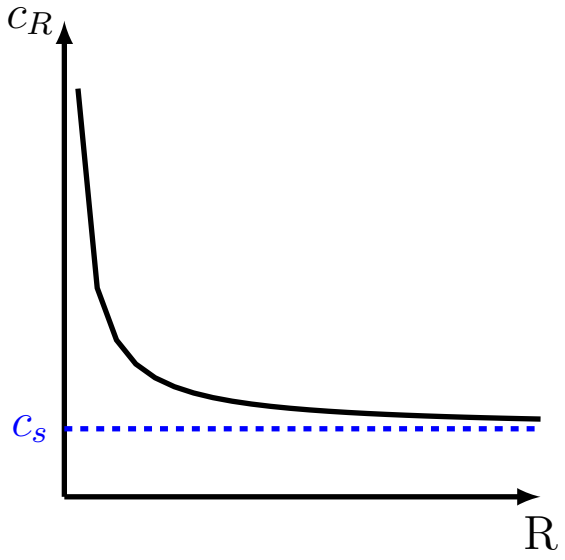


FIGURE 1.16 – Illustration de l'équation de Gibbs-Thomson linéarisée

Lifshitz et Slyozov [7], suivis par de nombreux auteurs dont Wagner [27], ont étudié le mûrissement d'Ostwald et ses conséquences sur une population de précipités dans des métaux (le mécanisme de croissance de précipités étant analogue à celui de croissance de bulles dans un fluide, leurs travaux s'appliquent à notre cas). Ils ont montré que le mûrissement d'Ostwald conduisait la population de précipités vers une distribution asymptotique, population nommée LSW en référence aux travaux de Lifshitz, Slyozov et Wagner [7] [27]. Cette convergence est plus ou moins rapide selon les paramètres du matériau, mais la forme atteinte est toujours la même. Globalement, on observe un étalement de la population, car les grosses bulles croissent tandis que les petites décroissent et disparaissent (figure 1.17). Dans notre cas, cette convergence vers une population asymptotique pourra sélectionner une taille de bulles avant qu'elles n'aient entamé leur migration, ce qui pourrait simplifier la modélisation de la remontée des bulles. Cela sera discuté en détails au chapitre 4.

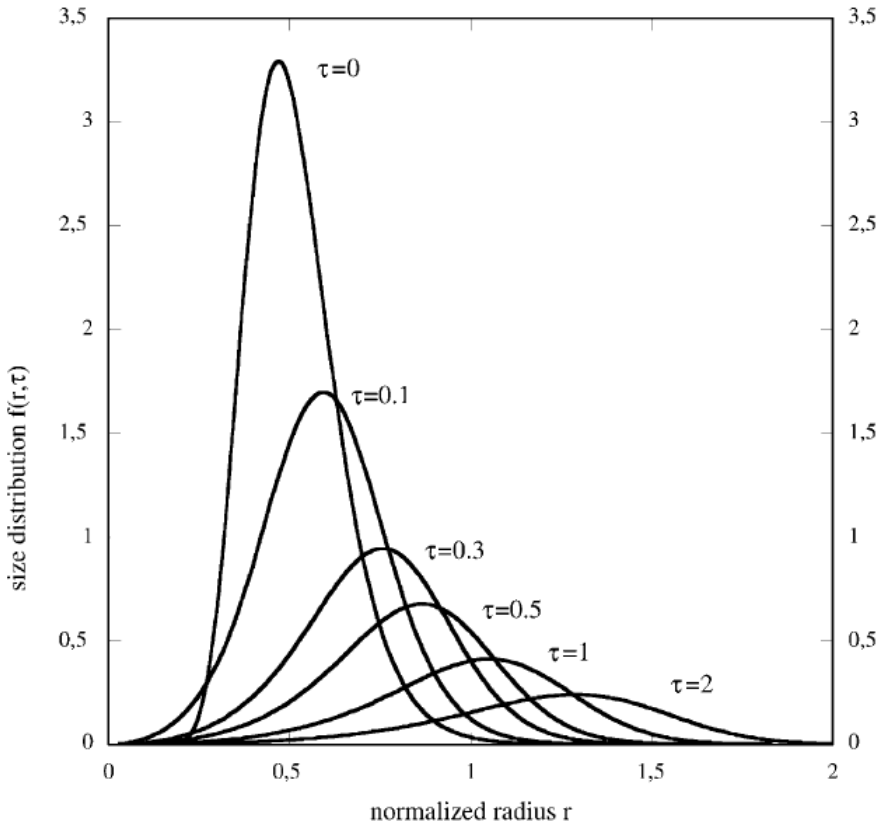


FIGURE 1.17 – Régime de LSW : étalement d'une population de bulles au cours du temps dû au murissement d'Ostwald [28], τ étant un temps adimensionnel

Migration

Dans un fluide, les bulles de toutes tailles sont sujettes à la migration, conséquence de la poussée d'Archimède si la densité des bulles est différente de celle du fluide. Les bulles de toute petite taille sont supposées parfaitement sphériques et indéformables, car la tension de surface (proportionnelle à R^2), qui tend à donner une forme sphérique à la bulle, est prépondérante devant les effets de déformation liés à la masse et donc au volume de la bulle (proportionnel à R^3). Dans ce cas, la bulle est assimilée à une sphère d'interface rigide. La loi de Stokes, valable pour des écoulements rampants, donne alors la valeur de la force de frottement s'exerçant sur la sphère en mouvement dans le fluide :

$$F_{trainee} = 6\pi\eta R V_z \tag{1.7}$$

R (m) étant le rayon de la bulle, η (Pa s) la viscosité du fluide et V_z (m s^{-1}) la vitesse de la bulle.

L'hypothèse de l'écoulement rampant (donc de vitesses faibles) est bien vérifiée dans le cas de bulles de petite taille car la seule force motrice (poussée d'Archimède proportion-

nelle à R^3) est faible et les forces de frottement (proportionnelles à la surface donc à R^2) sont relativement importantes. En écrivant l'équilibre des forces auxquelles est soumise la bulle assimilée à une sphère rigide (la poussée d'Archimède, la force de frottements et son poids), on obtient sa vitesse dans un fluide purement visqueux :

$$V_z = \frac{2}{9}\frac{(\rho_{bitume} - \rho_{gi})\, gR^2}{\eta} \tag{1.8}$$

où ρ ($\mathrm{kg\,m^{-3}}$) désigne une masse volumique et g ($\mathrm{m\,s^{-2}}$) l'accélération de la pesanteur. Dans le cas des bulles plus grosses, l'interface va être déformée au cours du mouvement car les effets de masse (et donc de volume) ne seront plus négligeables devant la tension de surface de la bulle. Les bulles sont supposées sphériques mais avec une interface libre, c'est le régime de Hadamard-Rybczynski. Leur vitesse de migration diffère alors simplement de l'équation (1.8) d'un préfacteur 3/2 :

$$V_z = \frac{(\rho_{bitume} - \rho_{gi})\, gR^2}{3\eta} \tag{1.9}$$

Malgré le très faible nombre de Reynolds (de l'ordre de 0.001) associé à la migration des bulles, nous considèrerons dans le modèle un régime de Hadamard-Rybcynski pour leur remontée [29]. En effet, celles-ci peuvent atteindre des tailles de l'ordre du cm et avoir une interface libre. A cette taille, la tension de surface n'est pas suffisamment forte pour maintenir une bulle parfaitement sphérique. Cette considération est appuyée par les images de microtomographie qui montrent des bulles de forme non sphérique, même pour de petites tailles.

Au cours de leur migration, les bulles vont engendrer une traînée dans le fluide. Cela va avoir une conséquence sur l'évacuation de gaz dans le cas d'une population de bulles. Les bulles situées sous une bulle en migration vont voir leur remontée facilitée par la traînée de la première, ce qui peut, en outre, mener au phénomène de coalescence si la seconde bulle rattrape la première.

Coalescence

La coalescence résulte en la formation d'une grosse bulle à partir de deux bulles de taille plus petite qui se rencontrent suite à leur migration et qui fusionnent (figure 1.18 [11]). Elle est rendue possible par les instabilités de l'interface bulle - milieu continu [30]. Elle est toujours composée, d'après les travaux de Acharya et Ulbrecht [31], de trois étapes :

- tout d'abord, la bulle qui suit entre dans le sillage de la bulle en tête.

11. Ces images ont été obtenues avec le dispositif expérimental décrit dans les perspectives de ce travail

- dans un second temps, la bulle qui suit s'approche rapidement de la bulle en tête, car étant dans le sillage de la bulle précédente, elle rencontre bien moins de résistance à l'avancement. Ce rapprochement s'effectue jusqu'à ce que les deux bulles entrent en collision et ne soient alors séparées que par un fin film liquide.
- si les forces extérieures maintiennent les deux bulles l'une contre l'autre suffisamment longtemps, le film liquide entre les deux bulles s'amincit et finit par se rompre.

Il est à noter que la dernière étape est elle-même décomposée en deux phases [32] :

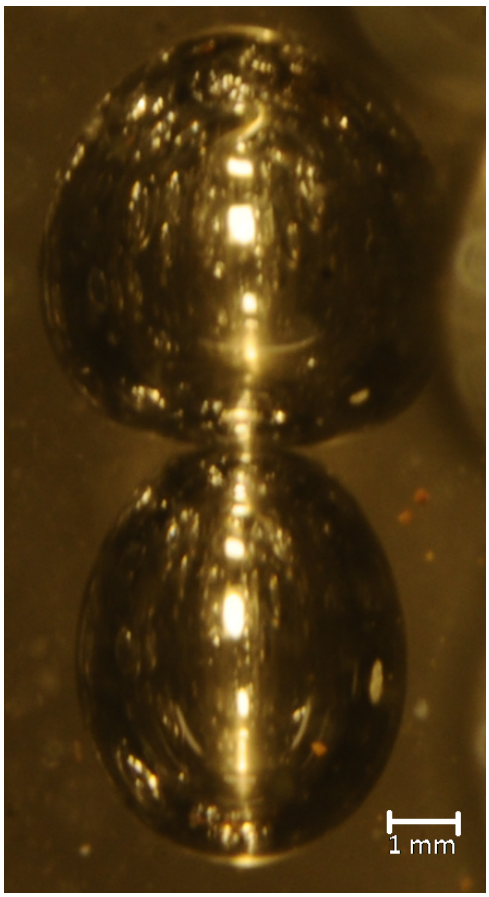
- tout d'abord, on observe un amincissement très rapide du film liquide séparant les deux bulles, jusqu'à atteindre un état de quasi-équilibre du film.
- ensuite, ont lieu l'amincissement et la rupture du film en état de quasi-équilibre.

C'est cette toute dernière étape qui définit le temps de coalescence. Les étapes précédentes constituent la phase d'approche, depuis l'entrée de la bulle suiveuse dans le sillage de la précédente jusqu'à l'obtention du film en quasi-équilibre. Pour donner un ordre de grandeur, les temps de coalescence observés par Acharya et Ulbrecht [31] sont environ d'un dixième de seconde pour des bulles d'un centimètre de diamètre dans une solution aqueuse à 0,5% en masse de PAAm (polyacrylamide), mais elles varient avec la taille des bulles et la nature du fluide.

De nombreux facteurs ont un impact sur la coalescence et peuvent en augmenter ou le nombre ou le temps. Parmi eux, les plus importants sont la concentration en surfactant, la taille des bulles et la viscosité du milieu continu. La viscosité joue un rôle favorable sur la coalescence [31]. En effet, une forte viscosité va entraîner un sillage plus important et de plus longue portée derrière la bulle de tête. Cela va augmenter le nombre de coalescences car on augmente les chances que des bulles entrent dans le sillage de la bulle de tête. Une fois que la bulle suiveuse est dans le sillage de la précédente, elle la rattrape inexorablement [32]. Cependant, Acharya et Ulbrecht [31] notent qu'il est commun que des bulles se rencontrent puis se séparent. La coalescence n'est donc pas systématique, même après que la bulle suiveuse soit entrée dans le sillage de la bulle de tête.

L'influence de la concentration de surfactant a été étudiée par Kim et Lee [33]. Ils observent une chute brutale du pourcentage de coalescence pour une certaine concentration de surfactant. Passé cette concentration, il n'y a plus aucune coalescence. Ils ont également étudié l'influence de la taille des bulles sur la coalescence. Leurs expériences les ont menés à conclure que, pour des bulles de taille plus petite, la concentration de surfactant pour laquelle la chute du nombre de coalescence a lieu est plus élevée. Cela indique que la taille des bulles est également un paramètre influant sur la coalescence. Les bulles de petite taille coalescent plus facilement que celles de taille supérieure. Acharya et Albrecht [31] expliquent cela par le fait que, plus les bulles sont grosses, plus la zone de contact entre celles-ci est étendue ; de ce fait, la surface du film à étirer est plus importante et le temps de coalescence est plus long.

Un bref calcul détaillé ci-dessous permet de quantifier l'influence de la coalescence sur l'évacuation de gaz par migration. Il montre que, dans l'hypothèse où deux bulles de taille identique coalesceraient, l'évacuation de gaz est augmentée d'un facteur 1,59. La coalescence joue donc un rôle primordial sur le gonflement.



(a) 2 bulles avant coalescence

(b) Bulle résultant de la coalescence

FIGURE 1.18 – Coalescence de 2 bulles d'hélium dans du Polydiméthylsiloxane

Admettons que nous ayons initialement deux bulles de rayon identique R_1 et qu'elles coalescent pour former une bulle de rayon R_2. Le volume total avant et après coalescence doit être identique, donc :

$$\frac{4\pi}{3}R_2^3 = 2\frac{4\pi}{3}R_1^3 \Longleftrightarrow R_2 = \sqrt[3]{2}R_1 \tag{1.10}$$

L'évacuation (notée Ev) de gaz peut être quantifiée en multipliant le nombre de bulles par leur volume et par leur vitesse de migration, ce qui donne dans notre cas avant et après coalescence :

$$Ev_1 = 2\frac{4\pi}{3}R_1^3\frac{\Delta\rho g R_1^2}{3\eta} \tag{1.11}$$

$$Ev_2 = \frac{4\pi}{3}R_2^3\frac{\Delta\rho g R_2^2}{3\eta} \tag{1.12}$$

Calculons désormais le rapport d'évacuation de gaz après et avant coalescence :

$$\frac{Ev_2}{Ev_1} = \frac{R_2^5}{2R_1^5} = 2^{2/3} = 1.59 \tag{1.13}$$

Des observations de coalescence (présentées succinctement en fin de manuscrit) ont pu être obtenues dans ce travail à l'aide d'un dispositif expérimental. Cependant, ces informations n'ont pas pu être intégrées au modèle de gonflement faute de temps, mais elles constituent une base solide pour de futurs travaux visant à enrichir le modèle.

Chapitre 2

Modélisation de la croissance des bulles

Sommaire

2.1 Hypothèses du modèle 42
2.2 Croissance d'une bulle isolée 42
2.2.1 Croissance hydrodynamique 43
2.2.2 Croissance diffusive 47
2.2.3 Adimensionnement du problème 51
2.2.4 Résolution de la croissance réelle d'une bulle isolée 52
2.2.5 Estimation du temps de vie d'une bulle dans le fût 53
2.3 Évolution d'une population de bulles 54
2.3.1 Mûrissement d'Ostwald 55
2.3.2 Modèle d'évolution d'une population 57
2.3.3 Problème adimensionné 58
2.4 Germination 59
2.4.1 Germination seuil 60
2.4.2 Germination continue 62
2.5 Étude analytique monodisperse 64
2.5.1 Grandeurs physiques considérées dans cette étude 64
2.5.2 Modèle analytique 64
2.5.3 Régime stationnaire 66
2.5.4 Cas particulier de la tranche inférieure du fût 67
2.6 Évacuation du gaz par diffusion 70

Ce chapitre est consacré à la présentation du modèle de gonflement des enrobés bitumineux soumis à des irradiations. Pour cela, nous nous sommes dans un premier temps intéressés à la croissance d'une bulle isolée, puis au cas d'une population de bulles. La partie la plus délicate concerne la modélisation de la germination des bulles. Elle est présentée dans ce chapitre et sera discutée plus en détails dans le chapitre 4. Le versant numérique et l'implémentation de ce modèle dans un code de calcul seront présentés dans le chapitre 3.

2.1 Hypothèses du modèle

On considère un domaine occupé par un fluide newtonien de viscosité variable au cours du temps. On dissout dans ce fluide un gaz donc la concentration varie au cours du temps et les hypothèses suivantes sont émises :

- on considère que la pression dans le fluide loin de la bulle est constante et vaut p_∞ (Pa),
- le terme source de dihydrogène T_{sm} ($\mathrm{kg\,m^{-3}\,s^{-1}}$) engendré par l'auto-irradiation est homogène en volume (hypothèse découlant des conclusions de la section 1.2.6 du chapitre 1) et varie au cours du temps,
- on considère une sursaturation en champ moyen : toutes les bulles voient la même concentration en gaz dissous dans la matrice. Cette hypothèse sera détaillée dans le chapitre 3,
- la limite de solubilité c_s ($\mathrm{kg\,m^{-3}}$) est donnée par la loi de Henry : $c_s = Hp_\infty$, où H ($\mathrm{m^2\,s^{-2}}$) est la constante de Henry. La loi de Henry est supposée toujours applicable,
- on considère que toutes les bulles sont sphériques (hypothèse supportée par les observations de microtomographie présentées dans la section 1.1.1 du chapitre 1),
- le fluide (enrobé bitumineux composé de sels de co-précipitation) est vu comme un continuum (hypothèse découlant des conclusions de la section 1.2.6 du chapitre 1), la présence des sels n'est pas prise en compte (si ce n'est à travers la viscosité de l'enrobé),
- le fluide est supposé incompressible.

2.2 Croissance d'une bulle isolée

Cette section est dédiée à la croissance d'une bulle sans considération de la germination. On considère que le germe est déjà créé et, si sa taille est supérieure à la taille critique de survie des germes (donnée par la thermodynamique [21]), alors il va croître [23]. A ce moment, la concentration à l'interface du germe dans le fluide diminue et devient donc inférieure à la concentration moyenne dans le fluide. Ce gradient de concentration engendre un flux de gaz par diffusion de la matrice vers le germe. Ce dernier étant très petit, son rapport surface/volume est grand et le flux diffusif (proportionnel à la surface du germe) est suffisamment important pour maintenir la pression du germe proche de sa pression initiale [34, 26]. Schématiquement, dans cette première phase, la pression du germe est considérée constante, le germe grandit vite, son rayon suit une loi exponentielle. Sa croissance est limitée par les forces visqueuses engendrées dans le fluide environnant [35]. Cette phase est appelée croissance hydrodynamique.

Ensuite, lorsque le germe a considérablement cru (on parle alors de bulle), il devient difficile de maintenir une pression proche de sa pression initiale. En effet, le rapport surface/volume a diminué, la bulle est plus grosse et il faut donc apporter plus de gaz pour maintenir sa pression au cours de sa croissance. Il faut alors puiser le gaz de plus en plus loin et l'acheminement de ce gaz jusqu'à la bulle par diffusion est lent. C'est le mécanisme limitant lors de cette seconde phase, où la taille de la bulle va suivre une évolution en racine carrée du temps [36]. La pression dans la bulle diminue alors pour atteindre une valeur juste au-dessus de la pression du fluide autour. Cette phase est appelée croissance diffusive car c'est désormais la diffusion qui régule la croissance de la bulle.

2.2.1 Croissance hydrodynamique

La croissance hydrodynamique d'une bulle est un problème mécanique. Pour atteindre l'équation d'évolution d'une bulle lors de la croissance hydrodynamique, nous avons dans un premier temps fait des hypothèses simplificatrices liées à notre cas (symétries...), puis nous avons écrit l'équilibre mécanique dynamique dans le fluide autour de la bulle. On peut ainsi remonter au tenseur des contraintes dans le fluide. En appliquant ensuite la loi de comportement du matériau (fluide newtonien), on trouve les déformations subies par le fluide. Enfin, en écrivant le tenseur des déformations dans le fluide à la surface de la bulle, on peut en déduire l'équation d'équilibre de la bulle.

Nous allons dans cette partie travailler en coordonnées sphériques, étant donné la géométrie du problème. On ne considère ici qu'une seule bulle. Son centre constituera l'origine du repère. Le rayon de la bulle est noté R, tandis que la première variable d'espace est notée r. Les deux autres variables d'espaces sont notées θ et ϕ. Pour le reste, nous utiliserons les notations couramment employées en mécanique des milieux continus. Une annexe en fin de ce manuscrit reprend l'ensemble de ces notations.

Cinématique radiale

L'objectif est ici d'obtenir l'expression du gradient de vitesse dans le fluide autour de la bulle, car elle nous sera utile pour l'application de la loi de comportement. Le champ de vitesse ($\boldsymbol{v}$) dans le fluide autour d'une bulle sphérique en croissance est uniquement radial [37] et dépend du temps t et de r (r étant pris par rapport au centre de la bulle) :

$$\boldsymbol{v} = (u(r,t), 0, 0) \tag{2.1}$$

Il vérifie dans le cas incompressible :

$$\boldsymbol{\nabla} \cdot \boldsymbol{v} = 0 \Longleftrightarrow \frac{1}{r^2}\frac{\partial(r^2 u(r,t))}{\partial r} = 0 \tag{2.2}$$

d'où

$$\frac{\partial u(r,t)}{\partial r} + 2\frac{u(r,t)}{r} = 0$$

En intégrant cette expression entre R (rayon de la bulle) et r, on obtient :

$$\begin{aligned} & \int_R^r \left(\frac{\partial u(r,t)}{\partial r} + 2\frac{u(r,t)}{r} \right) dr = 0 \\ \Rightarrow \quad & \Big[u(r,t) r^2 \Big]_R^r = u(r,t) r^2 - u(R,t) R(t)^2 = 0 \\ \Rightarrow \quad & u(r,t) = u(R,t) \frac{R(t)^2}{r^2} = \frac{R(t)^2}{r^2} \dot{R}(t) \end{aligned} \tag{2.3}$$

Ce qui induit un gradient de vitesse :

$$\nabla u(r,t) = \dot{\varepsilon}_{rr} = \frac{\partial u(r,t)}{\partial r} = -2\frac{R(t)^2}{r^3} \dot{R}(t) \tag{2.4}$$

Résolution en contraintes

Nous étudions la croissance d'une bulle sphérique en faisant l'hypothèse d'invariances selon θ et ϕ. Le tenseur des contraintes se réduit à une matrice diagonale à deux inconnues σ_{rr} et $\sigma_{\theta\theta}$ car $\sigma_{\theta\theta} = \sigma_{\phi\phi}$.

L'équilibre dynamique est donné par :

$$\boldsymbol{\nabla} \cdot \boldsymbol{\sigma} = \rho \left(\frac{\partial \boldsymbol{v}}{\partial t} + \boldsymbol{v} \boldsymbol{\nabla} \boldsymbol{v} \right) - \boldsymbol{f_e} \tag{2.5}$$

Les efforts extérieurs ($\boldsymbol{f_e}$) s'appliquant sur le fluide s'annulent et le terme d'inertie peut être négligé dans notre cas car le nombre de Reynolds [1] est très inférieur à 1. L'équation d'équilibre revient à :

1. $Re = \rho u(r,t) R(t)/\eta = \rho R(t)^2 \dot{R}(t) R(t)/(\eta r^2) \ll 1$ car $r > R$ par définition, la viscosité du bitume est de l'ordre de 10^6 Pa s et les images de microtomographie présentées au chapitre 1 nous montrent que $R(t) \ll 1\,\mathrm{m}$, ce qui implique également $\dot{R}(t) \ll 1\,\mathrm{m\,s^{-1}}$

$$-\boldsymbol{\nabla} p + \boldsymbol{\nabla} \cdot \boldsymbol{\tau} = 0 \tag{2.6}$$

$$\Rightarrow \quad -\frac{\partial p}{\partial r} + \left(\frac{\partial \tau_{rr}}{\partial r} + \frac{2\tau_{rr} - \tau_{\theta\theta} - \tau_{\phi\phi}}{r} \right) = 0 \tag{2.7}$$

De plus, le tenseur $\boldsymbol{\tau}$ est la partie déviatorique du tenseur $\boldsymbol{\sigma}$, ce qui signifie que sa trace est nulle :

$$\tau_{rr} + \tau_{\theta\theta} + \tau_{\phi\phi} = \tau_{rr} + 2\tau_{\theta\theta} = 0 \Longleftrightarrow \tau_{rr} = -2\tau_{\theta\theta} \tag{2.8}$$

L'équation (2.7) revient alors à :

$$-\frac{\partial p}{\partial r} + \left(\frac{\partial \tau_{rr}}{\partial r} + \frac{3\tau_{rr}}{r} \right) = 0 \tag{2.9}$$

$$\Rightarrow \quad -\frac{\partial p}{\partial r} + \frac{1}{r^3} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^3 \tau_{rr} \right) = 0 \tag{2.10}$$

La loi de comportement d'un fluide newtonien ($\tau_{rr} = 2\eta \dot{\varepsilon}_{rr}$) conduit à $\partial p / \partial r = 0$, d'où une pression constante dans le fluide (en rappelant que l'on a négligé le terme d'inertie) :

$$p(r) = p_\infty \tag{2.11}$$

L'hypothèse faite en début de chapitre que la pression était constante dans le fluide autour d'une bulle est donc validée. Écrivons maintenant le bilan des contraintes normales à l'interface de la bulle, qui va nous conduire à l'équation de croissance d'une bulle :

$$\sigma_{rr}(R_-) - \sigma_{rr}(R_+) + \frac{2\gamma}{R} = 0 \tag{2.12}$$

$$\Rightarrow \quad -p_i - (-p_\infty + \tau_{rr}(R)) = -\frac{2\gamma}{R} \tag{2.13}$$

$$\Rightarrow \quad p_i - p_\infty = \frac{2\gamma}{R} + 4\eta \frac{\dot{R}}{R} \tag{2.14}$$

où p_i est la pression à l'intérieur de la bulle et γ la tension de surface entre le dihydrogène et le bitume ($2\gamma/R$ représente alors la contrainte décrite par la loi de Laplace définie dans la section 1.3.4 du chapitre 1).

On constate que la croissance hydrodynamique d'une bulle repose sur l'équilibre de 3 forces, liées respectivement à la différence de pression entre l'intérieur et l'extérieur de la bulle, à la tension de surface entre le gaz et la matrice, et aux contraintes visqueuses engendrées dans le fluide.

Résolution de la croissance hydrodynamique

On part de l'équation précédente (2.14) pour résoudre la croissance hydrodynamique d'une bulle, en utilisant la loi de Henry pour expliciter la pression :

$$4\eta\frac{\dot{R}(t)}{R(t)} = p_i(t) - p_\infty - \frac{2\gamma}{R(t)} \tag{2.15}$$

$$= \frac{\overline{c}}{H} - \frac{c_s(t)}{H} - \frac{2\gamma}{R(t)} \tag{2.16}$$

On suppose que, le temps de la croissance hydrodynamique, la pression dans la bulle vaut $p_i = \overline{c}/H$, $\overline{c}$ étant la concentration moyenne dans le fluide. On introduit alors un rayon critique de croissance $R_c = (2\gamma H)/(\overline{c} - c_s)$ qui définit la taille limite au-delà de laquelle une bulle va croître (et en-deçà de laquelle elle va décroître) :

$$4\eta\frac{\dot{R}(t)}{R(t)} = \frac{2\gamma}{R_c(t)} - \frac{2\gamma}{R(t)} \tag{2.17}$$

$$\Rightarrow \quad 2\eta\frac{\dot{R}(t)}{R(t)} = \gamma\left(\frac{1}{R_c(t)} - \frac{1}{R(t)}\right) \tag{2.18}$$

Résolvons cette équation différentielle en supposant une concentration $\overline{c}$ et donc un rayon critique $R_c(t)$ constants :

$$\begin{aligned} 2\eta\frac{\dot{R}(t)}{R(t)} &= \gamma\left(\frac{1}{R_c(t)}-\frac{1}{R(t)}\right) \\ \Rightarrow \quad \dot{R}(t) &= \frac{\gamma}{2\eta R_c(t)}R(t)-\frac{\gamma}{2\eta} \\ \Rightarrow \quad R(t) &= k_h\cdot exp(\frac{\gamma}{2\eta R_c(t)}t)+R_c(t) \end{aligned} \tag{2.19}$$

où k_h est une constante que l'on détermine grâce à la condition initiale : $R(0) = R_0$:

$$k_h = R_0 - R_c(t) \tag{2.20}$$

La solution est donc :

$$R(t) = R_c(t) + (R_0 - R_c(t))\, exp\left(\frac{\gamma}{2\eta R_c(t)}t\right) \tag{2.21}$$

qui peut s'écrire :

$$R(t) = R_c(t) + (R_0 - R_c(t))\, exp\left(\frac{t}{t_h(t)}\right) \tag{2.22}$$

où $t_h(t) = (2\eta R_c(t))/\gamma$.

La croissance d'une bulle dans un régime purement hydrodynamique suit donc une évolution exponentielle. Elle comprend initialement une croissance très lente (on l'appellera temps d'induction, celui-ci est d'autant plus important que la taille du germe est proche de la taille critique de croissance), suivie d'une croissance très rapide. Dans la réalité, cette deuxième phase va être très courte et rapidement limitée par la diffusion du gaz de la matrice vers la bulle. Cette croissance exponentielle correspondra donc à l'asymptote de début de croissance réelle d'une bulle. Nous allons voir dans la section suivante la croissance diffusive, qui correspond à l'asymptote de fin de croissance réelle, puis nous résoudrons enfin la croissance réelle d'une bulle.

2.2.2 Croissance diffusive

L'existence d'un gradient de concentration dans le fluide autour d'une bulle provoque des mécanismes de diffusion. Ils sont couplés à la convection engendrée par la croissance de la

bulle. L'équation de convection-diffusion s'écrit :

$$\frac{\partial c(r,t)}{\partial t} + \boldsymbol{\nabla} \cdot (c(r,t)\boldsymbol{v}) = T_{sm} + \boldsymbol{\nabla} \cdot (D\boldsymbol{\nabla}(c(r,t))) \tag{2.23}$$

où c est la concentration massique, $\boldsymbol{v}$ la vitesse du fluide et T_{sm} le terme source massique de dihydrogène.

L'hypothèse du fluide incompressible conduit à $\boldsymbol{\nabla} \cdot \boldsymbol{v} = 0$, d'où :

$$\boldsymbol{\nabla} \cdot (c(r,t)\boldsymbol{v}) = \boldsymbol{v} \cdot \boldsymbol{\nabla}\,(c(r,t)) \tag{2.24}$$

On a donc

$$\frac{\partial c(r,t)}{\partial t} + \boldsymbol{v} \cdot \boldsymbol{\nabla} c(r,t) = T_{sm} + \boldsymbol{\nabla} \cdot (D\boldsymbol{\nabla} c(r,t)) \tag{2.25}$$

L'hypothèse d'une diffusion isotrope et constante :

$$\boldsymbol{\nabla} \cdot (D\boldsymbol{\nabla} c(r,t)) = D\Delta c(r,t) = D\frac{1}{r^2}\frac{\partial}{\partial r}\left(r^2\frac{\partial c(r,t)}{\partial r}\right) \tag{2.26}$$

et le fait que la vitesse du fluide soit purement radiale (équation (2.1)) nous conduisent à :

$$\frac{\partial c(r,t)}{\partial t} + u(r,t)\frac{\partial c(r,t)}{\partial r} = T_{sm} + D\frac{1}{r^2}\frac{\partial}{\partial r}\left(r^2\frac{\partial c(r,t)}{\partial r}\right) \tag{2.27}$$

Les conditions aux limites sont $c(\infty,t) = \bar{c}$ et $c(R,t) = c_R(t)$, où c_R (qui, par continuité, est égal au produit de la masse volumique du gaz ρ_{gi} dans la bulle et de la solubilité du dihydrogène dans le bitume S_o ($\mathrm{m}^3\,\mathrm{m}^{-3}$) : $c_R = \rho_{gi}S_o$) est donné par le bilan de masse dans la bulle :

$$
\begin{aligned}
\frac{\partial}{\partial t}(\text{masse dans la bulle}) &= \text{flux diffusif à travers la surface de la bulle} \\
\Rightarrow \quad \frac{\partial}{\partial t}\left(\rho_{gi}(t)V(t)\right) &= S(t)D\,\boldsymbol{\nabla} c(r,t)|_R \cdot \boldsymbol{n} \\
\Rightarrow \quad \frac{4\pi}{3}\frac{\partial}{\partial t}\left(\frac{c_R}{S_o}(t)R(t)^3\right) &= 4\pi R(t)^2 D\left.\frac{\partial c(r,t)}{\partial r}\right|_{R(t)} \\
\Rightarrow \quad \frac{1}{3}\frac{\partial}{\partial t}\left(c_R(t)R(t)^3\right) &= S_o R(t)^2 D\left.\frac{\partial c(r,t)}{\partial r}\right|_{R(t)}
\end{aligned}
\tag{2.28}
$$

Résolution de la croissance diffusive

Lorsque les bulles sont suffisamment grosses, leur croissance est lente et la concentration en gaz dissous à leur interface ne varie presque plus. En effet, la relation de Gibbs-Thomson nous indique que lorsqu'une bulle passe d'une taille de 10 µm à une taille de 1 cm, la concentration à son interface c_R diminue de seulement 5%. Pour cette raison, nous considèrerons, pour la résolution de la croissance diffusive, que les variations de c_R seront nulles :

$$
\frac{\partial c_R(t)}{\partial t} = 0 \tag{2.29}
$$

Ainsi, en supposant un gradient de concentration linéaire de portée R dans le fluide autour d'une bulle, il vient :

$$
\begin{aligned}
\frac{1}{3}\frac{\partial}{\partial t}\left(c_R(t)R(t)^3\right) &= S_o R(t)^2 D\left.\frac{\partial c(r,t)}{\partial r}\right|_{R(t)} \\
\Rightarrow \quad c_R(t)\frac{1}{3}\frac{\partial}{\partial t}\left(R(t)^3\right) &= S_o R(t)^2 D\left.\frac{\partial c(r,t)}{\partial r}\right|_{R(t)} \\
\Rightarrow \quad c_R(t)R(t)^2\dot{R}(t) &= S_o R(t)^2 D\left(\frac{\overline{c}(t)-c_R(t)}{R(t)}\right) \\
\Rightarrow \quad \dot{R}(t) &= \frac{S_o D}{R(t)}\left(\frac{\overline{c}(t)}{c_R(t)}-1\right)
\end{aligned}
\tag{2.30}
$$

On peut trouver une solution approchée de l'équation (2.30) en supposant $\overline{c}(t)$ et $c_R(t)$ constants au cours du temps. Cette simplification n'induit que peu d'erreur du fait que la

concentration varie très lentement en régime diffusif. En intégrant les deux membres de l'équation (2.30), on obtient :

$$\frac{1}{2}R(t)^2 = S_o D\left(\frac{\overline{c}}{c_R} - 1\right)t + cste \tag{2.31}$$

En notant R_0 le rayon de la bulle à l'instant $t = 0$, il vient aisément :

$$R(t) = \sqrt{2S_o D\left(\frac{\overline{c}}{c_R} - 1\right)t + R_0^2} \tag{2.32}$$

De plus, lorsque l'on est en régime diffusif, la croissance de la bulle est lente relativement à sa taille et les contraintes visqueuses peuvent être négligées [2] dans l'équation d'équilibre mécanique (2.14). On peut alors estimer la concentration $c_R(t)$ à l'interface de la bulle :

$$\begin{aligned}
4\eta\frac{\dot{R}(t)}{R(t)} &= p_i(t) - p_\infty - \frac{2\gamma}{R(t)} \\
\Rightarrow \quad 0 &\simeq Hp_i(t) - Hp_\infty - \frac{2H\gamma}{R(t)} \\
\Rightarrow \quad Hp_i(t) &\simeq Hp_\infty + \frac{2H\gamma}{R(t)} \\
\Rightarrow \quad c_R(t) &\simeq c_s\left(1 + \frac{2H\gamma}{Hp_\infty R(t)}\right) \\
\Rightarrow \quad c_R(t) &\simeq c_s\left(1 + \frac{R_\varepsilon}{R(t)}\right)
\end{aligned} \tag{2.33}$$

où $R_\epsilon = 2\gamma/p_\infty$ représente le rayon limite de croissance dans le cas où la concentration en gaz dissous serait le double de la concentration à saturation c_s.

La croissance d'une bulle en régime purement diffusif suit une loi en racine carrée du temps. Cette solution constitue l'asymptote de fin de croissance réelle d'une bulle. La croissance réelle n'ayant pas de solution analytique, nous allons la résoudre numériquement. Pour faciliter cette résolution, nous allons adimensionner le problème. Cette démarche est présentée dans la section suivante.

2. Le nombre de Peclet représentant le rapport du transfert par convection liée à la croissance de la bulle $\gamma/(2\eta)$ sur le transfert par diffusion D/R est ici estimé à $Pe = 0{,}3$ pour des bulles de 1 mm de rayon

2.2.3 Adimensionnement du problème

Les grandeurs suivantes sont introduites :

$$R_\varepsilon = \frac{2\gamma}{p_\infty} \quad ; \quad \theta_h = \frac{4\eta}{p_\infty} \text{ (temps lié à la croissance hydrodynamique)} \quad ; \quad \dot{S} = \frac{T_{sm}}{c_s}$$

$$\theta_d = \frac{R_\varepsilon^2}{D} \text{ (temps lié à la croissance diffusive)} \quad ; \quad s = \frac{c(r)}{c_s} \quad ; \quad x = \frac{r}{R_\varepsilon} \quad ; \quad s_R = \frac{c_R}{c_s} = \frac{p_i}{p_\infty}$$

$$\overline{s} = \frac{\overline{c}}{c_s} \quad ; \quad \tilde{R} = \frac{R}{R_\varepsilon} \quad ; \quad s_i = \frac{\rho_{gi}}{c_s} = \frac{c_R}{S_o c_s} = \frac{H p_i}{S_o H p_\infty} = \frac{p_i}{S_o p_\infty} \quad ; \quad \varepsilon = \overline{s} - 1 \text{ (sursaturation)}$$

Avec les grandeurs physiques liées aux cas présent ($\gamma = 0{,}03\,\mathrm{N\,m}$, $\eta = 10^6\,\mathrm{Pa\,s}$, $p_\infty = 10^5\,\mathrm{Pa}$, $D = 5 \times 10^{-11}\,\mathrm{m^2\,s^{-1}}$, $c_s = 2{,}7\,\mathrm{g\,m^{-3}}$, $T_{sm} = 1{,}7 \times 10^{-10}\,\mathrm{kg\,m^{-3}\,s^{-1}}$), on obtient :

$$R_\varepsilon = 0{,}6\,\mu\mathrm{m} \quad ; \quad \theta_h = 40\,\mathrm{s} \quad ; \quad \theta_d = 7{,}2\,\mathrm{ms} \quad ; \quad \dot{S} = 6{,}3 \times 10^{-8}\,\mathrm{s^{-1}}$$

Commençons par adimensionner l'équation d'équilibre mécanique à l'interface de la bulle (équation (2.14)) :

$$\begin{aligned}
4\eta \frac{\dot{R}(t)}{R(t)} &= p_i(t) - p_\infty - \frac{2\gamma}{R(t)} \\
\Rightarrow \quad \frac{4\eta}{p_\infty} \frac{\dot{R}(t)}{R(t)} &= \frac{p_i(t) - p_\infty}{p_\infty} - \frac{2\gamma}{p_\infty R(t)} \\
\Rightarrow \quad \theta_h \frac{\dot{R}(t)}{R(t)} &= \frac{p_i(t) - p_\infty}{p_\infty} - \frac{R_\varepsilon}{R(t)} \\
\Rightarrow \quad \theta_h \frac{\dot{R}(t)}{R(t)} &= s_R - 1 - \frac{R_\varepsilon}{R(t)} \\
\Rightarrow \quad \theta_h \frac{\dot{\tilde{R}}(t)}{\tilde{R}(t)} &= s_R - 1 - \frac{1}{\tilde{R}(t)} \\
\Rightarrow \quad \theta_h \dot{\tilde{R}}(t) &= \tilde{R}(s_R - 1) - 1 \qquad (2.34)
\end{aligned}$$

Pour la croissance diffusive, nous obtenons, en négligeant la convection liée à la croissance de la bulle (vitesse très faible) (équation (2.27)) :

$$\begin{aligned}
\frac{\partial c(r,t)}{\partial t} &= T_{sm} + D\frac{1}{r^2}\frac{\partial}{\partial r}\left(r^2\frac{\partial c(r,t)}{\partial r}\right) \\
\Rightarrow \quad \frac{\partial s(x,t)}{\partial t} &= \dot{S} + D\frac{1}{R_\varepsilon^2 x^2}\frac{\partial}{\partial x}\left(x^2\frac{\partial s(x,t)}{\partial x}\right) \\
\Rightarrow \quad \theta_d\frac{\partial s}{\partial t} &= \theta_d\dot{S} + \frac{1}{x^2}\frac{\partial}{\partial x}\left(x^2\frac{\partial s}{\partial x}\right) \qquad (2.35)
\end{aligned}$$

Le bilan de masse dans la bulle (équation (2.28)) s'écrit alors

$$\begin{aligned}
\frac{1}{3}\frac{\partial}{\partial t}\left(R^3 c_R(t)\right) &= S_o D R^2 \left.\frac{\partial c(r,t)}{\partial r}\right|_R \\
\Rightarrow \quad \frac{d}{dt}\left(\tilde{R}^3 s_R\right) &= \frac{3}{\theta_d}\tilde{R}^2 \left.\frac{\partial s}{\partial x}\right|_{\tilde{R}} \qquad (2.36)
\end{aligned}$$

L'expression adimensionnée de la concentration en gaz dissous à l'interface de la bulle (équation (2.33)) devient :

$$\begin{aligned}
c_R(t) &= c_s\left(1 + \frac{R_\varepsilon}{R(t)}\right) \\
\Rightarrow \quad s_R &= 1 + \frac{1}{\tilde{R}} \qquad (2.37)
\end{aligned}$$

L'ensemble des trois équations adimensionnées (2.34), (2.35) et (2.36) constitue le modèle de croissance d'une bulle isolée dans un fluide newtonien. Le résultat de sa résolution numérique est présenté dans la section suivante.

2.2.4 Résolution de la croissance réelle d'une bulle isolée

Le système d'équations régissant la croissance d'une bulle isolée dans un fluide newtonien a été résolu à l'aide d'un code de calcul développé sous le logiciel Matlab. Comme attendu à l'issue de la résolution analytique des solutions asymptotiques, la croissance suit dans un premier temps une loi exponentielle. Elle est très rapidement limitée par la diffusion et cela se manifeste dans un second temps par une évolution suivant une racine carrée du temps. Ces résultats sont en accord avec ceux obtenus par Navon et al. [26]. Comme

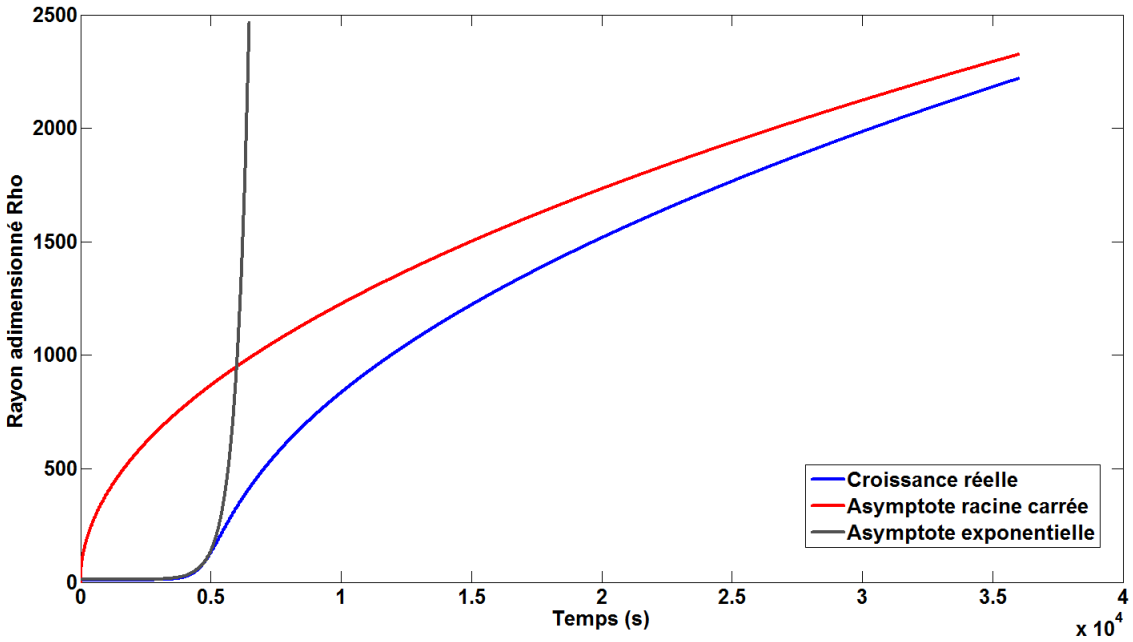


FIGURE 2.1 – Croissance d'une bulle isolée et asymptotes

nous pouvons le constater sur la figure 2.1, la première phase de croissance (croissance exponentielle) ne représente finalement qu'un temps d'induction avant la mise en place de la croissance diffusive.

Nous avons réalisé cette simulation de croissance avec les paramètres matériaux du cas réel d'un enrobé bitumineux (section 2.2.3) pour un rayon initial $R_0 = 10^{-6}$ m. La valeur du rayon initial correspond à la valeur minimale que nous modéliserons par la suite. En effet nous ne connaissons pas la taille à laquelle les germes apparaissent et nous ferons le choix de ne pas considérer de taille en deçà du micromètre. Ce choix est en accord avec notre hypothèse de faible sursaturation (la taille des germes est d'autant plus petite que la sursaturation est élevée).

Dans le cas étudié dans ce travail, le temps d'induction observé est très court comparé à la durée de vie d'une bulle dans un fût. Ce temps est de l'ordre de 2 heures, il peut être négligé devant le temps de croissance total d'une bulle (correspondant à sa durée de vie dans le fût avant évacuation), estimé à plus de 82 jours (le calcul pour estimer le temps total de croissance d'une bulle est présenté ci-après). Ce constat va nous amener à simplifier la croissance des bulles dans la modélisation de l'évolution d'une population, en ne considérant que la croissance diffusive de celles-ci.

2.2.5 Estimation du temps de vie d'une bulle dans le fût

La question que l'on se pose ici est de savoir combien de temps en moyenne met une bulle pour quitter le fût (ascension par poussée d'Archimède). Pour cela, nous allons considérer l'expression d'Hadamard-Rybczynski pour la vitesse V_z de remontée des bulles, ainsi que la solution de la croissance diffusive (équation (2.32)) pour l'évolution de la taille de la

bulle. La distance à parcourir par la bulle sera notée d_r et le temps de remontée que nous cherchons sera noté t_r. Une bulle est en croissance permanente, donc sa vitesse évolue au cours du temps, ce qui nous amène à cette expression de la distance d_r :

$$\begin{aligned}
d_r &= \int_0^{t_r} V_z(t) \cdot dt \\
\Rightarrow \quad d_r &= \int_0^{t_r} \left(\frac{\Delta\rho g R^2(t)}{3\eta} \right) dt \\
\Rightarrow \quad d_r &= \frac{\Delta\rho g}{3\eta} \int_0^{t_r} \left(2S_o D \left(\frac{\overline{c}}{c_R} - 1 \right) t + R_0^2 \right) dt \\
\Rightarrow \quad d_r &= \frac{\Delta\rho g}{3\eta} \left[S_o D \left(\frac{\overline{c}}{c_R} - 1 \right) t^2 + R_0^2 t \right]_0^{t_r} \\
\Rightarrow \quad d_r &= \frac{\Delta\rho g t_r}{3\eta} \left(S_o D \left(\frac{\overline{c}}{c_R} - 1 \right) t_r + R_0^2 \right) \\
\Rightarrow \quad 0 &= \frac{\Delta\rho g S_o D}{3\eta} \left(\frac{\overline{c}}{c_R} - 1 \right) t_r^2 + \frac{\Delta\rho g R_0^2}{3\eta} t_r - d_r
\end{aligned} \tag{2.38}$$

Avec les données du problème : $\eta = 10^6\,\mathrm{Pa\,s}$, $d_r = 0{,}4\,\mathrm{m}$ (soit la moitié de la hauteur du fût, dans le but d'obtenir un temps moyen), $S_o = 0{,}03$, $D = 5 \times 10^{-11}\,\mathrm{m^2\,s^{-1}}$, $\Delta\rho = 1390\,\mathrm{kg\,m^{-3}}$, $g = 10\,\mathrm{m\,s^{-2}}$ et en supposant $(\overline{c}/c_R) - 1 < 1$, la résolution de l'équation du second degré (2.38) nous conduit à un temps de remontée $t_r > 7{,}1 \times 10^6\,\mathrm{s} = 82$ jours.

Vérifions que l'hypothèse $(\overline{c}/c_R) - 1 < 1$ est valide durant le temps t_r. Pour cela, considérons qu'elle est initialement vraie et prenons le cas le plus défavorable où la variation de concentration est purement due au terme source T_{sm} (en ne prenant donc pas en compte la diminution de concentration liée à la croissance). Ainsi, pendant le temps t_r, la variation de concentration est majorée par $T_{sm} t_r = 1{,}3\,\mathrm{g\,m^{-3}}$, ce qui représente environ 48% de la concentration à saturation $c_s = 2{,}7\,\mathrm{g\,m^{-3}}$. La variation de concentration durant le temps t_r induit donc une erreur raisonnable sur l'hypothèse : $(\overline{c}/c_R) - 1 < 1$. L'ordre de grandeur du temps de remontée d'une bulle est donc bien de 82 jours.

2.3 Évolution d'une population de bulles

Suite aux résultats de la résolution numérique de la croissance d'une bulle isolée (temps d'induction hydrodynamique négligeable), nous allons faire l'hypothèse simplificatrice que les bulles ne grandissent que par régime diffusif. Cette simplification nous amène à considérer l'expression (2.30) pour la vitesse de croissance d'une bulle :

$$\dot{R}(t) = \frac{S_o D}{R(t)} \left(\frac{\overline{c}(t)}{c_R(t)} - 1 \right) \tag{2.30}$$

Nous prendrons son expression équivalente adimensionnée dans le code développé par la suite, en notant que la sursaturation ε dépend du temps et donc que la vitesse de croissance des bulles d'une même taille R peut évoluer au cours du temps :

$$\dot{\tilde{R}} = \frac{S_o}{\tilde{R}\theta_d} \left(\frac{1+\varepsilon}{1+\frac{1}{\tilde{R}}} - 1 \right) \tag{2.39}$$

2.3.1 Mûrissement d'Ostwald

Le mûrissement d'Ostwald est un phénomène qui a lieu dès lors que plusieurs bulles sont présentes dans le fluide. Son principe est que les grosses bulles croissent au détriment des petites [7, 27]. Le mûrissement a pour conséquence un étalement de la population et son impact est d'autant plus important que les bulles sont petites et que la différence de taille entre les bulles est importante (cela repose sur l'équation de Gibbs-Thomson présentée au Chapitre 1).

Au bout d'un certain temps, le mûrissement d'Ostwald conduit la population de bulles vers une forme auto-similaire (figure 2.2) : la distribution normalisée par le rayon moyen est constante. Lorsque ce régime est atteint, le cube du rayon moyen de la population évolue linéairement avec le temps ($\overline{R}^3 = K_{LSW} t$) et le nombre de bulles par unité de volume décroît linéairement en temps [38, 7, 27, 39]. Néanmoins, lors du régime transitoire, le mûrissement peut être accéléré, notamment dans le cas d'une population bimodale dont le pic de petites bulles est très rapidement effacé [40]. Cela s'explique par le fait que, pour une population bimodale, la différence de taille entre les petites et les grosses bulles est plus importante, d'où un mûrissement plus rapide.

Il est à noter que la vitesse de mûrissement K_{LSW} est proportionnelle au coefficient de diffusion et à la tension de surface [41, 42, 43], ce qui indique qu'un fort coefficient de diffusion accélère la croissance des grosses bulles. La viscosité n'a quant à elle pas d'effet sur la vitesse de murissement [44].

La fraction volumique des bulles a un impact sur le mûrissement. Le régime théorique de LSW [7, 27] n'est en effet valable que dans le cas d'une fraction volumique idéalement nulle. Expérimentalement, les distributions observées sont moins étroites que la forme idéale décrite par le régime de LSW et la population ne suit pas strictement la loi d'évolution décrite précédemment [45]. Pour pallier ce problème, de nombreuses théories ont été développées pour prendre en compte l'influence de la fraction volumique sur le mûrissement [46, 47, 48, 49]. Ainsi, plus la fraction volumique est élevée, plus la population est étalée. Néanmoins, la loi d'évolution $\overline{R}^3 = K_{LSW} t$ reste valable quelle que soit la fraction

volumique, mais elle influe sur la valeur de la vitesse de mûrissement K_{LSW}.

Ratke et Beckermann [28] ont étudié l'influence d'un terme source [3] sur le mûrissement. Ces deux mécanismes vont en fait s'opposer. Plus le terme source est élevé, plus le nombre de bulles conservées est grand. Ainsi, le terme source empêche la décroissance des petites bulles due au mûrissement. Néanmoins, la présence d'un terme source ne modifie pas la loi d'évolution du rayon moyen en fonction du temps $\overline{R}^3 = K_{LSW}t$, si ce n'est que la vitesse de mûrissement K_{LSW} augmente avec le terme source. De plus, l'augmentation du terme source conduit à une population plus étroite, se rapprochant d'une population monodisperse.

La migration des bulles a également des conséquences sur le mûrissement. Ce dernier est en effet accéléré car la migration augmente les gradients de concentration et donc la diffusion. Ainsi, pour des nombres de Peclet très supérieurs à 1, la loi d'évolution du rayon moyen en fonction du temps est donnée par $\overline{R}^{3/2} = K_{LSW}t$ [40]. Pour de faibles nombres de Peclet, l'évolution du rayon moyen varie entre $\overline{R}^{3/2} = K_{LSW}t$ et $\overline{R}^3 = K_{LSW}t$ [41]. Il est à noter que le mûrissement joue un rôle favorable sur l'évacuation du gaz car il fait grossir les bulles. Son impact sur le dégazage est donc d'autant plus important que la croissance des bulles liée à l'apport de gaz par terme source est faible.

La modélisation du mûrissement est implicite et directement prise en compte dans l'expression régissant la vitesse de croissance d'une bulle (équation (2.39)). En effet, dans cette expression, le premier terme représente l'enveloppe de la solution, c'est-à-dire la croissance en racine carrée du temps, tandis que le second terme est une condition sur la croissance de la bulle. Il paraît évident que la bulle croît (a une vitesse de croissance positive) si ce terme est positif, tandis que la bulle décroît dans le cas contraire. Cela nous amène à cette condition de taille de bulle pour la croissance :

$$\begin{aligned} \frac{1+\varepsilon}{1+\frac{1}{\tilde{R}}} &> 1 \\ \Rightarrow \quad \tilde{R} &> \frac{1}{\varepsilon} \Longleftrightarrow R > \frac{2H\gamma}{\overline{c}-c_s} \end{aligned} \tag{2.40}$$

Cette condition de croissance montre qu'une augmentation de concentration permet à des bulles de plus petite taille de croître.

Dans le cas d'une distribution de bulles, un équilibre va se mettre en place entre les bulles et la matrice. Ainsi, le rayon limite de croissance-décroissance des bulles se situera au cœur de la distribution de bulles, légèrement décalé à gauche du pic de densité maximale [50],

3. Ils ont étudié le mûrissement dans le cas de la croissance de grains dans un métal par extraction de chaleur. Le système est analogue au nôtre, leur taux d'évacuation de chaleur étant l'équivalent du terme source de notre étude

comme représenté sur la Figure 2.2. L'influence du mûrissement d'Ostwald dans notre cas d'étude sera discutée au chapitre 4.

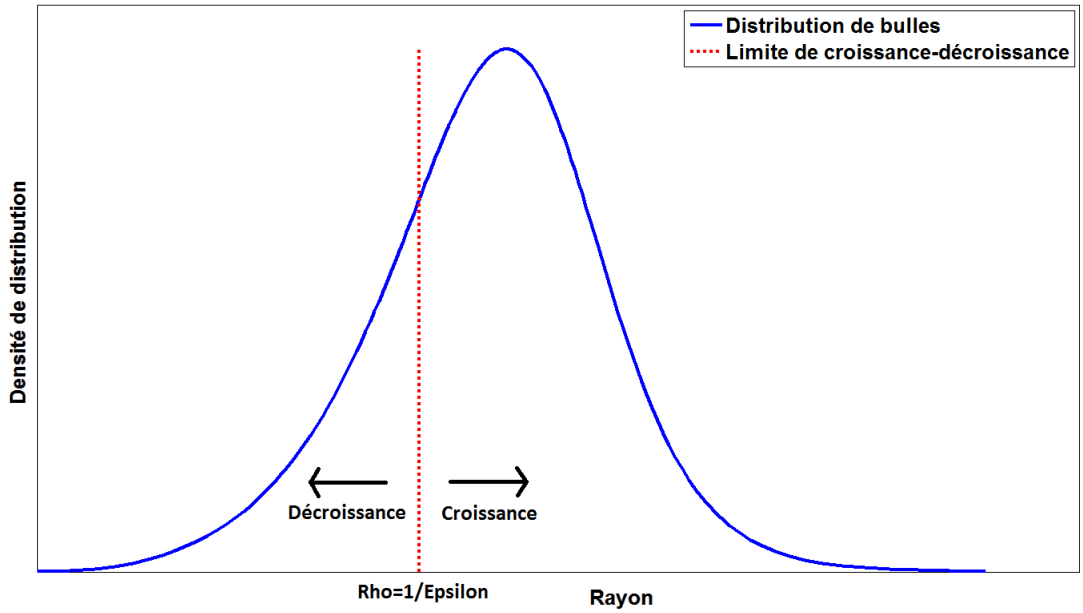


FIGURE 2.2 – Illustration du mûrissement d'Ostwald : rayon limite de croissance dans le cas d'une population de bulles

Dans le modèle développé au cours de cette thèse, la sursaturation ε ne dépendra que de la hauteur Z dans le fût. Pour chaque hauteur, la sursaturation sera vue en champ moyen, c'est-à-dire qu'elle sera constante dans toute une tranche horizontale du fût. Les bulles situées à la même hauteur dans le fût verront donc toutes la même concentration de gaz : nous n'avons pas pris en compte de variation locale de concentration. Cela induit inévitablement un biais par rapport à la réalité. Néanmoins, nous le supposerons négligeable au vu de la très bonne dispersion des sels dans la matrice. En effet, cette qualité de dispersion nous permet de considérer une création de gaz homogène en volume, ainsi qu'une répartition spatiale fine des germes de bulles (apparues par germination hétérogène), et donc des bulles par la suite.

2.3.2 Modèle d'évolution d'une population

L'évolution d'une population de bulles est régie en partie par une équation de continuité. En faisant l'hypothèse d'un régime dilué (faibles fractions volumiques de bulles), nous négligerons la vitesse du fluide liée au gonflement. En notant $F(R)$ la densité de distribution de tailles de bulles (exprimée en $\mathrm{m}^{-1}\,\mathrm{m}^{-3}$), cette équation s'écrit alors :

$$\frac{\partial F(R,Z,t)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial Z}\left(V_Z(R,t)F(R,Z,t)\right) + \frac{\partial}{\partial R}\left(\dot{R}(t)F(R,Z,t)\right) = \Psi_s, \tag{2.41}$$

où R représente le rayon des bulles, Z la hauteur dans le fût, t le temps, V_Z la vitesse de migration des bulles et Ψ_s ($\mathrm{m}^{-1}\,\mathrm{m}^{-3}\,\mathrm{s}^{-1}$) le terme de germination.

Dans le membre de gauche, le premier terme représente les variations du nombre de bulles, le second la convection, le troisième la croissance, tandis que le second membre représente la création de nouveaux germes. Ce dernier terme est non nul dans notre étude, car la germination est prise en compte. Le terme de germination n'est *a priori* pas connu, mais il sera déterminé en fonction de l'évolution des autres grandeurs du système. Cela est présenté dans la section 2.4 ci-après.

Dans notre approche en champ moyen, un bilan de masse global [4] est nécessaire. Schématiquement, il indique que la variation de masse de gaz dissous dans la matrice est égale à la somme de l'apport de gaz par radiolyse et de la variation de masse de gaz par diffusion, à laquelle on retranche la masse de gaz absorbée par la croissance des bulles :

$$\dot{\varepsilon} = T_{sm} - \frac{4\pi}{3}\frac{\partial}{\partial t}\left(\int_0^\infty R^3 F(R)\rho_{gi} dR\right)\Bigg|_{\text{restreint à la croissance}} + G_d \tag{2.42}$$

où ε est la sursaturation, elle représente le réservoir de gaz pour l'alimentation des bulles, T_{sm} représente le terme source massique de gaz apporté par radiolyse ($\mathrm{kg\,m}^{-3}\,\mathrm{s}^{-1}$), G_d correspond à la variation de concentration de gaz due à la diffusion et ρ_{gi} représente la masse volumique du gaz dans la bulle.

Les bulles étant supposées sphériques mais déformables et le fluide étant considéré newtonien, l'expression de la vitesse de migration des bulles est donnée par la loi de Hadamard-Rybczynski [51, 6] (cf. section 1.3.4 du chapitre 1) :

$$V_z = \frac{(\rho_{bitume} - \rho_{gi})\, gR^2}{3\eta} \tag{2.43}$$

2.3.3 Problème adimensionné

Cette section présente l'ensemble des équations adimensionnées constituant le modèle d'évolution d'une population de bulles dans un fluide newtonien. Sa résolution numérique sera présentée au chapitre 3.

L'équation de continuité de la population de bulles (équation (2.41)) devient (en notant ψ_s l'équivalent adimensionné du terme de germination Ψ_s) :

4. autour d'un volume où le champ moyen varie peu

$$\frac{\partial f(\tilde{R},z,t)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial z}\left(v_z f(\tilde{R},z,t)\right) + \frac{\partial}{\partial \tilde{R}}\left(\dot{\tilde{R}}(t) f(\tilde{R},z,t)\right) = \psi_s, \tag{2.44}$$

Comme on l'a vu précédemment, la vitesse de croissance/décroissance des bulles, avec pour hypothèse une croissance purement diffusive, s'écrit :

$$\dot{\tilde{R}} = \frac{S_o}{\tilde{R}\theta_d}\left(\frac{1+\varepsilon}{1+\frac{1}{\tilde{R}}} - 1\right) \tag{2.45}$$

Le bilan de masse global (équation(2.42)) est :

$$\dot{\varepsilon} = \dot{S} - \frac{4\pi}{3}\frac{\partial}{\partial t}\left(\int_0^\infty \tilde{R}^3 f(\tilde{R}) s_i(\tilde{R}) d\tilde{R}\right)\Big|_{\text{restreint à la croissance}} + g_d \tag{2.46}$$

où g_d correspond à la variation de masse de gaz par diffusion.

Toujours dans l'hypothèse d'une croissance purement diffusive ($\dot{\tilde{R}} \simeq 0$), la dépendance de la concentration de gaz dans la bulle en fonction de sa taille est donnée par l'équation (2.37) :

$$s_i = \frac{s_R}{S_o} = \frac{1+\frac{1}{\tilde{R}}}{S_o} \tag{2.37}$$

2.4 Germination

C'est le premier mécanisme d'évolution des bulles, et c'est aussi le moins connu. On sait seulement que la germination est d'autant plus probable que la sursaturation ε est élevée. Bien que nous n'ayons pas pu tirer de conclusion pertinente sur la localisation de sites de germination privilégiés, notamment à cause du grand nombre et de la bonne dispersion des sels dans la matrice, nous supposons qu'ils vont constituer une aide à la création de bulles et que la germination sera hétérogène. En effet, il a été montré dans la littérature que la germination homogène est rarement observée [22, 21]. La germination hétérogène est largement majoritaire dès lors que des porosités sont présentes dans le fluide. Or, les différents sels présents et leurs granulométries variées nous permettent de supposer que les conditions sont réunies pour assister à une germination très majoritairement hétérogène. Cela nous permet d'émettre l'hypothèse que la sursaturation restera faible, c'est-à-dire inférieure à 1, contrairement au cas de la germination homogène qui nécessite des sursaturations de l'ordre de $\varepsilon = 100$ [22].

Deux approches ont été développées pour modéliser la germination, elles sont présentées dans les deux sections qui suivent. La première est appelée germination seuil dans ce travail, elle consiste à imposer une limite à la sursaturation, tandis que la seconde, appelée germination continue, consiste à insérer de nouveaux germes tant que la sursaturation augmente. Pour les deux méthodes, la germination consiste à introduire une population de germes dont l'enveloppe est de forme prédéfinie (créneau, gaussienne ...). En revanche, le nombre total de germes introduits et leur taille moyenne sont fonction de la modélisation choisie et de l'état du système.

Dans le cas étudié dans ce travail, la germination de bulles est inévitable du fait qu'il y a un terme source continu de gaz par radiolyse. Ainsi, quelle que soit la modélisation choisie pour la germination, celle-ci doit avoir lieu à un moment ou un autre. Au vu des résultats obtenus par Ratke et Beckermann [28], il semble à première vue que le choix de modélisation n'importe pas car le mûrissement d'Ostwald fait rapidement converger la population vers un régime LSW. Pour cette raison, nous ne nous intéresserons pas dans ce travail aux mécanismes de germination à l'échelle du micromètre et en-dessous car ce raffinement paraît non conséquent sur les échelles de temps et d'espace considérées. Néanmoins, une discussion sur les résultats obtenus pour les deux modélisations de la germination sera menée au chapitre 4.

2.4.1 Germination seuil

La germination seuil consiste à imposer une borne maximale à la sursaturation. Dès lors que cette limite de concentration est atteinte, tout le gaz créé par radiolyse est affecté à la création de nouveaux germes (Figure 2.3). Le rajout de bulles supplémentaires va avoir pour conséquence une augmentation du pompage du gaz dissous et, lorsque suffisamment de bulles auront été insérées, elles pomperont plus de gaz qu'il n'en est créé par radiolyse et la sursaturation pourra diminuer.

Cette méthode parait théoriquement viable mais, en réalité, elle contraint fortement le système. En effet, dans le modèle, la valeur limite de sursaturation est une donnée imposée par l'utilisateur, sans moyen de vérifier sa pertinence. Supposons que le système réagisse comme un oscillateur et que cette limite soit mal choisie : le système pourra être perturbé sans cesse par cette limite artificielle. Celui-ci va devoir réagir pour s'adapter à chaque fois que la limite sera atteinte et il sera constamment hors équilibre. Il pourra donc être instable et osciller sans cesse. L'influence de cette limite sera discutée au chapitre 4, à partir de résultats de simulations.

La taille des nouveaux germes introduits lors de la germination est choisie de telle sorte qu'ils soient tous viables. En d'autres termes, le rayon minimal de la distribution de germes insérés est supérieur au rayon critique de croissance-décroissance des bulles. Il nous est en effet inutile d'insérer des germes pour les faire disparaître juste après. Autant directement ne considérer que ceux qui sont viables et qui auront un impact sur la population et sur le gonflement. Ceux que nous aurions insérés et qui auraient décru n'auraient fait que rendre du gaz à la matrice et ainsi engendrer la germination de nouveaux germes dont une partie

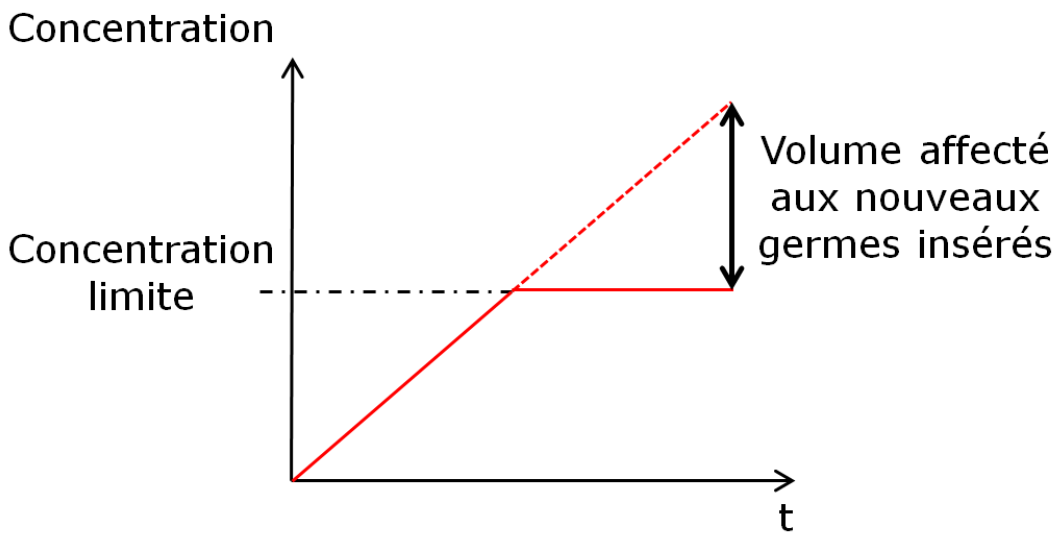


FIGURE 2.3 – Germination seuil

serait également vouée à disparaître. Ce choix permet donc de gagner en temps de calcul, ce qui sera un paramètre important étant donné l'importance de la durée qui doit être simulée par le code.

Le choix de la population de germes introduite semble influent sur l'évolution du système, notamment à cause de l'allure de la courbe représentant la vitesse de croissance des bulles (Figure 2.4). En effet, tout en n'introduisant que des germes stables, c'est-à-dire dont la taille est supérieure à $1/\varepsilon$, leur rayon peut être plus ou moins éloigné de cette limite. Dans le cas où les germes introduits sont très proches de la limite de croissance-décroissance, leur vitesse de croissance est très faible, ce qui se manifeste par un pompage de gaz restreint. Il va donc nous falloir ajouter beaucoup de germes pour arriver à contre-balancer le terme source. Puis, dans un second temps, lorsqu'ils auront crû un peu, leur vitesse de croissance va considérablement augmenter (Figure 2.4), ainsi que le pompage de gaz dissous associé. A ce stade, le terme source sera bien impuissant devant le pompage et la sursaturation va fortement diminuer. Par la suite, le risque est que toutes les bulles aient eu le temps d'évacuer le fût avant que le terme source n'ait fait ré-augmenter la concentration jusqu'à la limite de germination. Ainsi, les nouveaux germes insérés devront à eux seuls équilibrer le terme source. Il faudra donc en insérer beaucoup, créant à nouveau un déséquilibre pour la suite. Cette situation restera inévitablement hors-équilibre et ne ressemble pas à ce à quoi nous pouvons nous attendre. Dans la réalité, nous imaginons plutôt qu'un état stationnaire va finir par s'installer. Dans celui-ci, il serait attendu que des bulles soient insérées de manière quasiment continue et que l'évacuation des plus grosses bulles soit relativement constante. Il y aurait alors une cohabitation entre petites et grosses bulles et à aucun moment nous ne nous retrouverions sans bulle dans le fluide. Le pompage serait relativement constant au cours du temps et la sursaturation ne fluctuerait que très peu. Pour ces raisons, une deuxième approche pour modéliser la germination a été considérée, elle est décrite dans la section suivante.

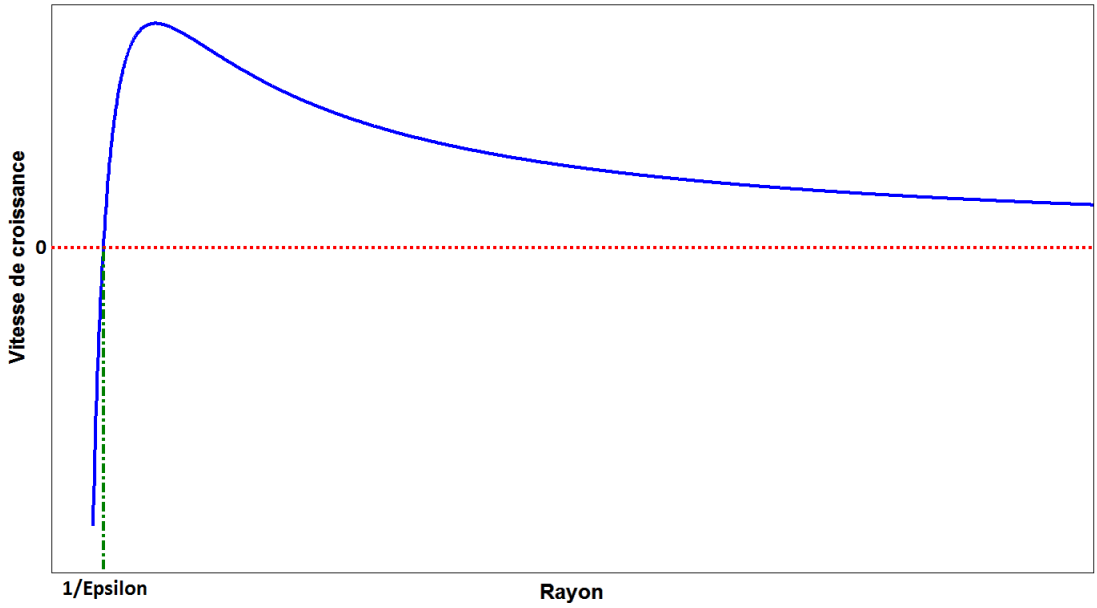


FIGURE 2.4 – Vitesse de croissance des bulles en fonction de leur taille

2.4.2 Germination continue

Cette approche de la germination est celle qui nous a paru la plus intuitive et la plus probable car le système trouve lui-même son équilibre. Dans cette méthode, nous n'imposons pas de valeur maximale à la sursaturation, la concentration peut augmenter indéfiniment si le système physique le permet. Néanmoins, dès lors que la sursaturation augmente, un pourcentage de cette augmentation est prélevé et affecté à la création de nouveaux germes (Figure 2.5). En revanche, lorsque la concentration est constante ou diminue, aucun germe n'est créé. La justification physique de cette méthode repose sur le fait que lorsque la sursaturation augmente, c'est que les bulles ne pompent pas assez de gaz dans leur environnement pour équilibrer l'apport de gaz par radiolyse. Cela laisse donc une fraction du terme source disponible pour alimenter une fraction du volume de matériau vierge de bulles. Des germes pourront donc naître dans cette partie du fluide.

L'intérêt de cette méthode, selon nos travaux, est que le système peut s'auto-réguler. Si la sursaturation augmente fortement, de nombreux germes sont insérés. Ils vont alors pomper beaucoup de gaz et limiter l'augmentation de concentration. Ce système de germination fait analogie à un régulateur de type "dérivée" en électronique. Des fluctuations peuvent être constatées dans les premiers instants, mais, intuitivement, il est attendu que le système atteigne un état d'équilibre que nous n'aurons pas imposé, mais qui sera l'équilibre propre au système.

Contrairement au cas de la germination seuil, nous n'imposons pas de borne physique (sursaturation maximale) au système, on le contraint donc moins. En revanche, cette méthode fait apparaître un nouveau paramètre a choisi par l'utilisateur et non par la physique elle-même : le pourcentage d'augmentation de concentration que l'on convertit en nouveaux germes par unité de volume. L'influence de ce paramètre sera étudiée au chapitre 4. Si

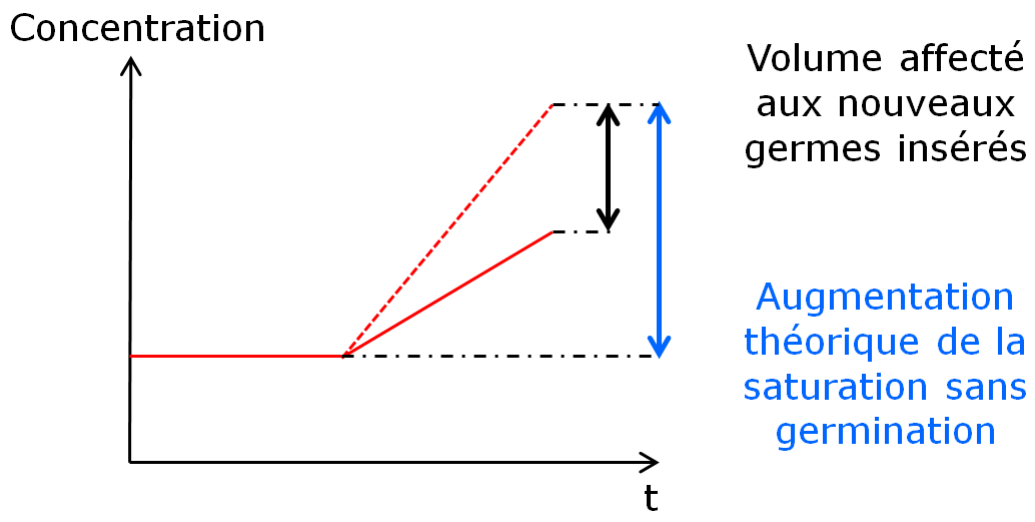


FIGURE 2.5 – Germination continue

cette méthode pour représenter la germination est la bonne, il est attendu que cette valeur n'ait aucune influence sur le régime stationnaire du système, mais uniquement sur le régime transitoire (temps d'établissement et amplitude des fluctuations le cas échéant), le système s'adaptant intrinsèquement.

Pour donner un sens physique au paramètre a, imaginons un système clos composé d'une seule bulle dans un fluide alimenté par un terme source. Cette bulle va absorber une partie du gaz créé par radiolyse. Supposons qu'elle n'absorbe pas la totalité du gaz produit dans le fluide du système. On peut alors allouer à la bulle une fraction du fluide total, dans laquelle la valeur du gaz produit est égale à la quantité de gaz absorbée par la bulle. Ce volume est en quelque sorte la propriété de la bulle, c'est son domaine d'influence. Considérons maintenant le complémentaire de ce volume de fluide. Il correspond au volume dans lequel tout le gaz créé contribue à l'augmentation de la sursaturation, aucune partie de ce gaz ne sert à alimenter la bulle. Le paramètre a correspond alors à la fraction de ce volume vierge qui va donner lieu à de la germination. Plus il est proche de 1, plus la germination est facile, toute fluctuation de la concentration donne lieu à de la germination. En revanche, pour a se rapprochant de 0, la germination est plus rare. Pour $a = 0{,}01$ par exemple, on peut considérer qu'il n'y a que dans 1% du volume de fluide vierge que les fluctuations de concentration, dues à la création de gaz, ont réussi à engendrer de la germination. Avec une vision plus statistique, a peut être vu comme étant la probabilité qu'une fluctuation de concentration donne lieu à de la germination.

Dans cette méthode comme dans la méthode précédente, seuls des germes viables sont insérés. Cette méthode se démarque néanmoins par le fait que la germination peut avoir lieu pour n'importe quelle valeur de sursaturation. Par conséquent, les germes introduits auront des tailles variables au cours de la simulation, car elles sont dictées par la valeur de la sursaturation au moment de la germination.

2.5 Étude analytique du modèle d'évolution d'une population de bulles dans le cas d'une population monodisperse

Le cas d'une population réelle polydisperse comportant beaucoup de couplages, il n'est pas possible de l'étudier analytiquement et la résolution de son évolution nécessite un code numérique. Néanmoins, certaines tendances peuvent être décrites sans aide numérique en supposant une population monodisperse. Cette section est donc consacrée à l'étude analytique de l'évolution d'une population monodisperse de bulles dans un fluide newtonien. Le cas stationnaire sera notamment présenté ici et comparé dans le chapitre 4 aux résultats numériques obtenus pour une population réelle.

Dans le chapitre 4, une étude de sensibilité du code aux paramètres physiques sera présentée et l'analyse des résultats sera guidée par les équations analytiques présentées ici.

2.5.1 Grandeurs physiques considérées dans cette étude

La liste des grandeurs physiques liées au cas d'étude présenté dans ce travail et leurs valeurs nominales sont recensées ici. Par la suite, les applications numériques seront faites par défaut à partir de ces valeurs. Lorsque d'autres valeurs seront considérées, cela sera précisé explicitement. Les données de débit de dose et de terme source sont reprises d'un colis de référence défini dans un document interne CEA [8]. Ce colis est un cas majorant de débit de dose et de terme source, les résultats obtenus seront donc des majorants en terme de gonflement.

Concentration à saturation	$c_s = 2{,}7\,\mathrm{g\,m^{-3}}$
Viscosité	$\eta = 10^6\,\mathrm{Pa\,s}$
Hauteur d'un fût	$h_f = 0{,}65\,\mathrm{m}$
Débit de dose initial	$\dot{d} = 4{,}5\,\mathrm{Gy\,h^{-1}}$
Terme source massique initial	$T_{sm} = 1{,}7 \times 10^{-10}\,\mathrm{kg\,m^{-3}\,s^{-1}}$
Terme source volumique initial	$T_{sv} = 1{,}9 \times 10^{-9}\,\mathrm{m^3\,m^{-3}\,s^{-1}}$
Différence de masse volumique entre l'enrobé et le gaz	$\Delta\rho = 1390\,\mathrm{kg\,m^{-3}}$
Accélération de la pesanteur	$g = 10\,\mathrm{m\,s^{-2}}$
Fraction volumique moyenne des bulles	$\phi = 0.1$
Coefficient de diffusion	$D = 5 \times 10^{-11}\,\mathrm{m^2\,s^{-1}}$
Sursaturation moyenne	$\varepsilon = 0.01$
Rayon d'adimensionnement	$R_\varepsilon = 0{,}6\,\mathrm{\mu m}$
Solubilité du dihydrogène dans l'enrobé	$S_o = 0{,}03\,\mathrm{m^3\,m^{-3}}$

2.5.2 Modèle analytique

L'idée est ici de repartir des équations constituant le modèle présenté dans la section 2.3.2 et de les appliquer au cas d'une population monodisperse. Les équations de base qui régissent le système sont l'équation de continuité (2.41) (Ψ_s représentant un terme de germination en $\mathrm{m^{-1}\,m^{-3}\,s^{-1}}$), la vitesse de croissance des bulles (2.48) et le bilan de masse

(2.42) (exprimé ici en bilan de volume et en négligeant la variation de concentration due à la diffusion G_d) :

$$\frac{\partial F}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial Z}\left(V_z F\right) + \frac{\partial}{\partial R}\left(\dot{R}F\right) = \Psi_s, \tag{2.47}$$

$$\dot{R} = \frac{S_o D}{R}\left(\frac{1+\varepsilon}{1+R_\varepsilon/R} - 1\right) \tag{2.48}$$

$$\dot{\varepsilon} = T_{sv} - \frac{4\pi}{3}\frac{\partial}{\partial t}\left(\int_0^\infty R^3 F(R)\frac{p_i}{p_\infty}dR\right)\Bigg|_{\text{restreint à la croissance}} \tag{2.49}$$

On rappelle ici l'expression qui permet de passer d'une fraction volumique ϕ à un nombre de bulles par unité de volume N (m^{-3}) dans le cas monodisperse :

$$\phi = \frac{4\pi}{3}NR^3 \tag{2.50}$$

L'équation de vitesse de croissance des bulles (2.48) peut être simplifiée sous l'hypothèse que les bulles sont suffisamment grosses ($R >> R_\varepsilon$) :

$$\dot{R} \simeq \frac{S_o D\varepsilon}{R} \tag{2.51}$$

L'équation de continuité dans le cas d'une population monodisperse peut également être simplifiée, en introduisant (par commodité pour la suite) le terme de germination volumique t_g exprimé en ($\mathrm{m}^3\,\mathrm{s}^{-1}\,\mathrm{m}^{-3}$) ($t_g$ correspond au volume total de germes insérés par unité de temps et par unité de volume) et en sachant que la vitesse de migration est donnée par $V_z = (\Delta\rho g R^2)/(3\eta) = k_v R^2$:

$$\frac{\partial N}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial Z}\left(V_z N\right) = \frac{3t_g}{4\pi R^3} \tag{2.52}$$

$$\Rightarrow \quad \frac{\partial}{\partial t}\left(\frac{\phi}{R^3}\right) + k_v\frac{\partial}{\partial Z}\left(\frac{\phi}{R}\right) = \frac{t_g}{R^3} \tag{2.53}$$

$$\Rightarrow \quad \dot{\phi} + k_v R^3\frac{\partial}{\partial Z}\left(\frac{\phi}{R}\right) = t_g + \frac{3\phi}{R}\dot{R} \tag{2.54}$$

Nous supposerons ici pour l'équation de bilan de masse (2.42) que $p_i(R) \simeq p_\infty$. La variation de gaz dissous est la conséquence du terme source, de la croissance des bulles et de la germination :

$$\frac{\partial \varepsilon}{\partial t} = T_{sv} - \frac{4\pi}{3} N \frac{\partial R^3}{\partial t} - t_g \tag{2.55}$$

$$= T_{sv} - 3\frac{\phi}{R^3} R^2 \dot{R} - t_g \tag{2.56}$$

$$= T_{sv} - 3\frac{\phi}{R} \dot{R} - t_g \tag{2.57}$$

On doit donc résoudre le système suivant :

$$\begin{cases} \dot{\phi} + k_v R^3 \dfrac{\partial}{\partial Z}\left(\dfrac{\phi}{R}\right) = t_g + \dfrac{3\phi}{R^2} S_o D\varepsilon \\ \dot{\varepsilon} = T_{sv} - \dfrac{3\phi}{R^2} S_o D\varepsilon - t_g \end{cases} \tag{2.58}$$

2.5.3 Régime stationnaire

Il est intéressant dans un premier temps d'étudier le régime stationnaire de ce système, donc de considérer une fraction volumique ϕ et une sursaturation ε constantes. De plus, l'hypothèse est ici faite que la germination de nouvelles bulles n'a lieu qu'au fond du fût. Elle est vue comme une condition limite : on considère donc que le terme de germination est nul dans un élément de volume du fluide :

$$\dot{\varepsilon} = \dot{\phi} = t_g = 0 \tag{2.59}$$

Le système (2.58) se simplifie et peut alors s'écrire :

$$\begin{cases} k_v R^3 \dfrac{\partial}{\partial Z}\left(\dfrac{\phi}{R}\right) = \dfrac{3\phi}{R^2} S_o D\varepsilon \\ \dfrac{3\phi}{R^2} S_o D\varepsilon = T_{sv} \end{cases} \tag{2.60}$$

On extrait ainsi ϕ/R de la seconde équation du système (2.60) :

$$\frac{\phi}{R} = \frac{RT_{sv}}{3S_oD\varepsilon} \tag{2.61}$$

En injectant ensuite ϕ/R dans la première équation du système (2.60), on arrive à :

$$k_vR^3\frac{\partial}{\partial Z}\left(\frac{RT_{sv}}{3S_oD\varepsilon}\right) = T_{sv} \Longrightarrow \frac{\partial}{\partial Z}\left(\frac{R}{\varepsilon}\right) = \frac{3S_oD}{k_vR^3} \tag{2.62}$$

En réécrivant l'équation (2.62) un peu différemment, on peut faire apparaître un nombre de Peclet Pe :

$$\frac{\partial}{\partial Z}\left(\frac{R}{\varepsilon}\right) = \frac{3S_oD}{k_vR^3} = \frac{3S_oD/R}{k_vR^2} = \frac{1}{Pe} \tag{2.63}$$

Rappelons que le nombre de Peclet est le rapport d'un terme de convection sur un terme de diffusion. Ainsi, dans notre cas, si la convection est dominante ($Pe > 1$), il devrait être constaté que le rapport R/ε est constant dans toute la hauteur du fût. Cela sera étudié dans le cas d'une simulation numérique.

Avec les paramètres de l'étude présente, la condition pour que la convection soit dominante ($Pe > 1$) conduit à cette condition sur le rayon des bulles : $R > 1{,}2$ mm. Cette condition est compatible avec notre hypothèse de départ ($R >> R_\varepsilon$), donc un régime convectif est envisageable.

2.5.4 Cas particulier de la tranche inférieure du fût

L'objectif est ici de comparer les volumes de gaz impliqués par la croissance, la migration et la radiolyse pendant un temps Δt, dans une tranche de matériau de hauteur h_t et de section S située à la base du fût. Nous nous intéressons à cet endroit du fût car c'est ici que nous nous attendons à ce que la germination soit prépondérante. En effet, dès lors qu'une première germination a eu lieu dans tout le volume, les bulles vont migrer. Ainsi, des bulles évacuées par migration sont remplacées par d'autres en tout endroit du fût sauf au fond où aucune bulle n'arrive par en dessous. Le gaz créé par radiolyse n'y sera alors pas absorbé et l'augmentation de sursaturation va conduire à la germination de bulles.

Pour réaliser cette étude analytique, nous allons considérer une population monodisperse de N bulles de rayon R par unité de volume et de fraction volumique $\phi = 4\pi NR^3/3$

dans un volume Sh_t de fluide. Les tendances obtenues dans cette partie restent réalistes tant que la taille de la tranche considérée reste suffisamment petite pour que l'hypothèse d'une population monodisperse soit valable, c'est-à-dire que le gradient de taille de bulles en hauteur ne soit pas trop important ($(\partial R/\partial Z)h_t << R$). L'étude présentée ci-après a uniquement pour but d'aider à la compréhension des phénomènes mis en jeu et d'appréhender leur importance relative, ce qui permettra par la suite d'expliquer certains résultats de simulations numériques.

Une analyse très grossière consisterait à étendre ces résultats à une tranche de même hauteur qu'un fût. Néanmoins, il est attendu que, dans ce cas, le gradient de taille de bulles en hauteur soit trop important pour que les tendances anticipées ne soient constatées.

Volumes mis en jeu par les différents mécanismes

Le volume de gaz V_{mig} impliqué par la convection (correspondant au débit de gaz à travers la section S du fût pendant le temps Δt) est lié à la vitesse de migration des bulles V_z :

$$V_{mig} = \phi S V_z \Delta t = \frac{\Delta\rho g \phi S R^2}{3\eta} \Delta t \tag{2.64}$$

Le volume de gaz V_c absorbé dans le volume Sh_t de matériau par les bulles pendant leur croissance est obtenu en multipliant le nombre de bulles NSh_t par leur vitesse de croissance volumique, en utilisant l'équation (2.51) :

$$V_c = \frac{4\pi}{3} N Sh_t \frac{d\left(R^3\right)}{dt} \Delta t = 4\pi N Sh_t \dot{R} R^2 \Delta t = \frac{3\phi Sh S_o D\varepsilon}{R^2} \Delta t \tag{2.65}$$

En notant T_{sv} le terme source en $\mathrm{m^3\,m^{-3}\,s^{-1}}$, le volume V_r apporté par radiolyse dans le volume Sh_t est donné par :

$$V_r = T_{sv} Sh_t \Delta t \tag{2.66}$$

Pour que le volume de gaz impliqué par la croissance des bulles soit égal au volume lié à la convection, il faut :

$$\frac{\Delta\rho g\phi S R^2}{3\eta}\Delta t = \frac{3\phi S h_t S_o D\varepsilon}{R^2}\Delta t \tag{2.67}$$

$$\Rightarrow \quad R = \left(\frac{9\eta h_t S_o D\varepsilon}{\Delta\rho g}\right)^{1/4} \tag{2.68}$$

Pour que le volume de gaz impliqué par la croissance des bulles soit égal au volume lié à la radiolyse, il faut :

$$\frac{3\phi S h_t S_o D\varepsilon}{R^2}\Delta t = T_{sv} S h_t \Delta t \tag{2.69}$$

$$\Rightarrow \quad R = \left(\frac{3\phi S_o D\varepsilon}{T_{sv}}\right)^{1/2} \tag{2.70}$$

Pour que le volume de gaz dû à la radiolyse soit égal au volume lié à la convection, il faut :

$$T_{sv} S h_t \Delta t = \frac{\Delta\rho g\phi S R^2}{3\eta}\Delta t \tag{2.71}$$

$$\Rightarrow \quad R = \left(\frac{3\eta T_{sv} h_t}{\Delta\rho g\phi}\right)^{1/2} \tag{2.72}$$

Il est à noter que l'étude des volumes liés aux différents mécanismes présentés ici dans le cas de la tranche inférieure du fût peut être généralisée à n'importe quelle tranche du fût, à condition de modifier le volume impliqué par la convection. En effet, si l'on considère une tranche aléatoirement positionnée, la convection va évacuer des bulles à travers la section supérieure de la tranche, mais elle va également en apporter à travers la section inférieure. En notant R_{inf} le rayon des bulles lorsqu'elles entrent dans la tranche et R_{sup} leur rayon lorsqu'elles en sortent et en supposant que la fraction volumique n'évolue pas dans la tranche, le volume impliqué par la convection devient :

$$V_{mig} = \frac{\Delta\rho g\phi S\left(R_{sup}^2 - R_{inf}^2\right)}{3\eta}\Delta t \tag{2.73}$$

Condition pour que le gonflement augmente

Le but est ici de chercher quelles sont les configurations de paramètres pour lesquelles le gonflement augmente dans la tranche inférieure du fût. Pour cela, il faut que le volume de gaz lié à la croissance des bulles soit supérieur au volume lié à l'évacuation par convection. De plus, si l'on veut que l'augmentation du gonflement soit pérenne, il faut que la quantité de gaz disponible pour la croissance ne devienne pas limitante, donc que le volume impliqué par radiolyse soit au minimum égal au volume absorbé par les bulles. Ces conditions d'augmentation du gonflement ($V_r \geq V_c > V_{mig}$) mènent à une hauteur minimale de la tranche de 96 cm. Ainsi, il est impossible, dans le cas d'un fût de 65 cm de hauteur, que le gonflement augmente indéfiniment.

Le terme source T_{sv} qui serait nécessaire pour que le gonflement puisse augmenter indéfiniment est :

$$T_{sv} > \left(\frac{S_o D \varepsilon \Delta \rho g \phi^2}{\eta h_t} \right)^{1/2} \tag{2.74}$$

Cette condition impliquerait un terme source $T_{sv} = 2{,}2 \times 10^{-9}\,\mathrm{m^3\,m^{-3}\,s^{-1}}$ dans le cas d'un fût, ce qui représenterait un débit de dose de 5,6 Gy/h. Cette valeur est supérieure au cas réel, ce qui indique que, pour celui-ci, le gonflement atteindra une valeur maximale. En revanche, pour des cas tests où le débit de dose peut atteindre des valeurs jusqu'à 5000 Gy/h, il est envisageable que le gonflement augmente indéfiniment dans l'hypothèse d'une population monodisperse.

2.6 Évacuation du gaz par diffusion

L'évacuation du gaz produit par radiolyse peut avoir lieu par la diffusion à travers la matrice jusqu'à la surface du fût d'une part et l'évacuation des bulles peut se faire par poussée d'Archimède d'une autre part. Nous allons, dans un premier temps, émettre l'hypothèse que le gaz est totalement évacué par diffusion et voir ce que cela impliquerait. Pour cela, nous considérons le cas favorable à la diffusion où la totalité du gaz serait produite au fond du fût et où un gradient linéaire de concentration en gaz dans la matrice du fond du fût vers la surface est supposé (solution stationnaire de l'équation de diffusion (1.3) présentée dans la section 1.3.4 du chapitre 1). Nous prenons comme condition aux limites une concentration nulle en surface du fût. Cherchons, dans ces conditions, quelle devrait être la concentration en gaz c_0 au fond du fût pour que l'évacuation par diffusion soit égale à la production de gaz par radiolyse. Le débit D_d de gaz évacué par diffusion est donné par :

$$D_d = D \nabla c S \tag{2.75}$$

où D est le coefficient de diffusion, c la concentration en gaz dissous et S la section du fût.

La quantité de gaz Q_r produite par radiolyse par unité de temps est donnée par :

$$Q_r = T_{sm} h_f S \tag{2.76}$$

où T_{sm} est le terme source exprimé en $\mathrm{kg\,m^{-3}\,s^{-1}}$ et h_f la hauteur du fût.

L'hypothèse que la totalité du gaz produit est évacuée par diffusion nous conduit à :

$$T_{sm} h_f S = D \nabla c S \tag{2.77}$$

$$\Rightarrow \quad T_{sm} h_f = D \frac{c_0}{h_f} \tag{2.78}$$

$$\Rightarrow \quad c_0 = \frac{T_{sm} h_f^2}{D} \tag{2.79}$$

Dans le cas d'un fût de hauteur 65 cm et avec les paramètres matériaux considérés dans cette étude, la concentration au fond du fût vaudrait $c_0 = 1{,}4\,\mathrm{kg\,m^{-3}}$. Cette valeur de concentration est bien supérieure à la concentration à saturation c_s du dihydrogène dans le bitume ($2{,}7\,\mathrm{g\,m^{-3}}$) et induirait une sursaturation $\varepsilon = 518$. Une aussi haute valeur de saturation (irréaliste au demeurant) impliquerait qu'il y ait de la germination et donc des bulles. Or, les bulles vont migrer et évacuer du gaz. L'hypothèse que la totalité du gaz est évacuée par diffusion n'est donc pas envisageable pour un fût et la présence de bulles est ainsi justifiée.

Chapitre 3

Implémentation du code de gonflement des fûts d'enrobés bitumineux

Sommaire

3.1 Architecture du programme principal 74
3.2 Déclaration des variables - Adimensionnement 76
3.3 Intégration du terme source par Rabbi 76
3.4 Discrétisation du problème 77
3.5 Adaptation du maillage en $\tilde{R}$ 78
3.6 Adaptation du maillage en z 82
3.7 Calcul du terme source et de la dose intégrée 83
3.8 Résolution des équations d'évolution 84
3.8.1 Croissance 85
3.8.2 Mise à jour de la sursaturation 86
3.8.3 Diffusion de gaz en hauteur 87
3.8.4 Germination 88
3.8.5 Migration 90
3.9 Adaptation du pas de temps 92
3.10 Évolution de la viscosité - Loi de vieillissement 94
3.11 Calcul du gonflement 95
3.12 Calcul de l'évacuation de gaz par migration des bulles 96

Ce chapitre est consacré à l'implémentation numérique du modèle présenté au chapitre précédent, ainsi qu'à la présentation des méthodes numériques de résolution. Dans un premier temps, l'architecture générale du programme sera présentée, puis les étapes successives de résolution seront détaillées. Aucun résultat ne sera présenté dans ce chapitre, l'étude de sensibilité du code ainsi que les discussions qui en découlent feront, entre autres, l'objet du chapitre 4. En l'état actuel, le programme doit être ouvert et lancé à l'aide du logiciel Matlab et les paramètres physiques et numériques sont rentrés directement dans le code source par l'utilisateur. Suite à cette thèse, il est envisagé de compiler ce code et d'en faire une application indépendante et transportable, ne nécessitant plus l'utilisation du logiciel Matlab. Une interface homme-machine (IHM) sera également développée pour rendre le code plus commode d'utilisation.

3.1 Architecture du programme principal

Le code principal consiste en un enchaînement de plusieurs étapes (détaillées dans les sections suivantes) qui peuvent être rassemblées en trois groupes. Pour certaines de ces étapes, le programme principal fait appel à des fonctions définies dans d'autres fichiers, c'est notamment le cas de la résolution de l'évolution de la population de bulles et des adaptations de maillage décrites ci-après.

Le premier groupe (représenté par le cadre vert sur la figure 3.1) correspond à la mise en place des environnements mathématique et numérique nécessaires à la résolution du problème. Il est composé de la déclaration des variables, de l'entrée des paramètres matériaux et de leur adimensionnement, du calcul du terme source via l'appel du code RABBI, de la discrétisation spatiale de l'échantillon et de l'initialisation de la solution.

Le second groupe est une boucle itérative (représentée par le cadre rouge sur la figure 3.1) : elle va être répétée autant de fois que nécessaire pour atteindre le temps de simulation pré-défini par l'utilisateur. Dans celle-ci, le temps est incrémenté (l'incrément de temps entre deux itérations est également appelé pas de temps), les représentations numériques du fût et de la population de bulles sont adaptées si besoin, les paramètres matériaux qui évoluent au cours du temps sont mis à jour (viscosité, dose intégrée), puis le système d'équations régissant l'évolution de la population est résolu. Après cette résolution, un test est réalisé pour vérifier que l'incrément de temps choisi était adapté à l'évolution. Si tel n'est pas le cas, ce dernier est modifié, la résolution précédente est effacée et une nouvelle est refaite en considérant la nouvelle valeur du pas de temps (cela correspond à la petite boucle représentée par le cadre bleu sur la figure 3.1). Lorsque le pas de temps est jugé adapté, la résolution est validée. On procède alors au calcul de la quantité de gaz évacué et du gonflement macroscopique du fût, ainsi qu'à l'affichage de l'évolution des variables.

Un troisième groupe (représenté par le cadre orange sur la figure 3.1) est imbriqué dans le second : il est constitué des étapes de la résolution des équations d'évolution de la population de bulles. C'est le cœur du programme. Ces étapes constituent une fonction codée dans un fichier indépendant, elle est appelée par le programme principal à chaque itération.

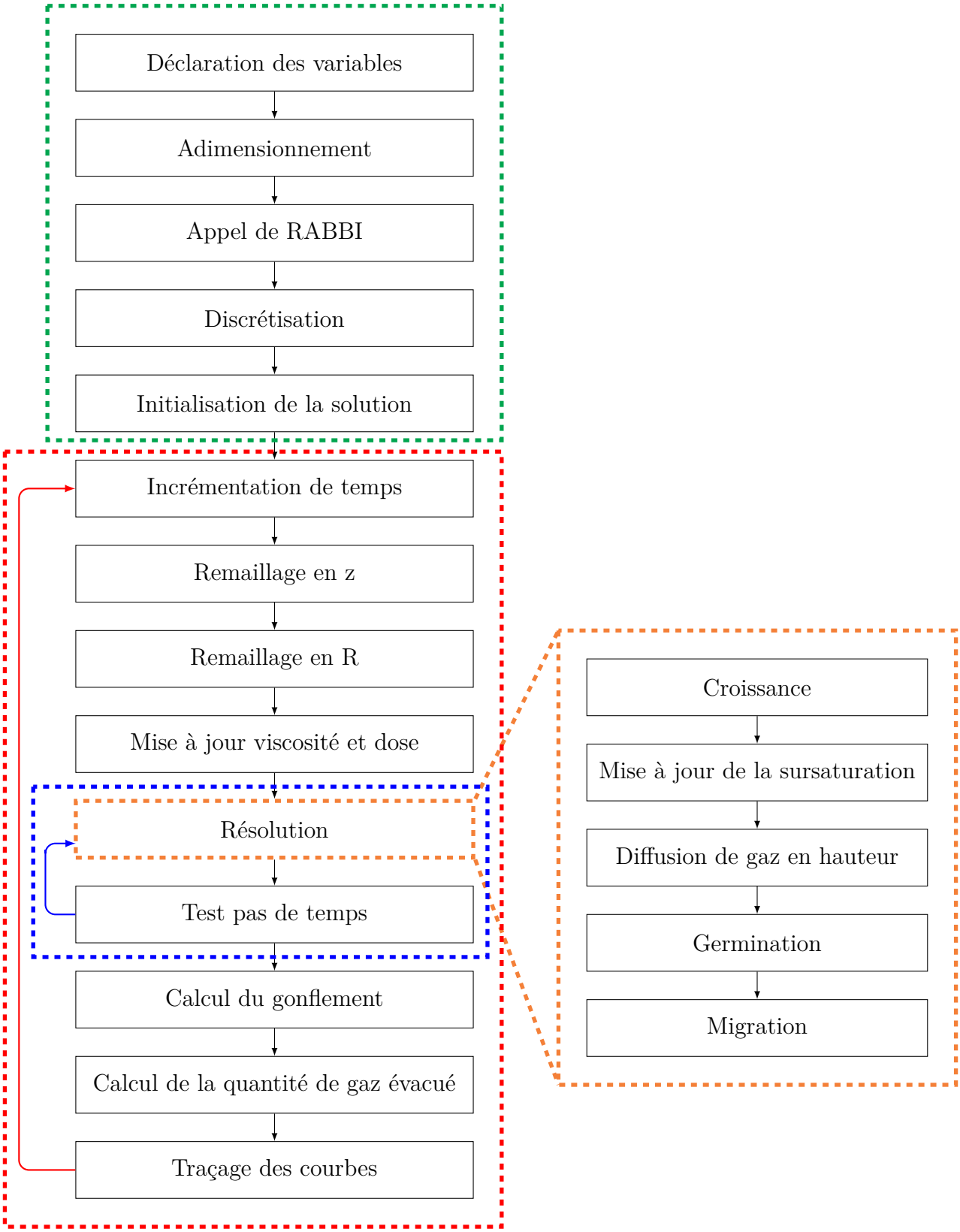


FIGURE 3.1 – Architecture du code de gonflement développé dans ce travail

3.2 Déclaration des variables - Adimensionnement

La première étape du programme consiste à déclarer l'ensemble des variables nécessaires à la résolution du problème. On leur alloue de la mémoire. L'utilisateur renseigne ici les paramètres physiques du problème (loi de viscosité de l'enrobé, géométrie du fût, masse volumique de l'enrobé, coefficient de diffusion de l'hydrogène...) ainsi que les paramètres numériques. Dans le développement de ce programme, un effort a été porté sur la minimisation du nombre de paramètres numériques à rentrer par l'utilisateur. Le but est d'avoir un code qui s'adapte automatiquement aux données du problème, avec une grande facilité de prise en main. Néanmoins, un certain nombre de paramètres numériques sont inévitablement à renseigner, tels que la finesse du maillage désirée.

Après avoir renseigné l'ensemble des paramètres numériques et physiques, les grandeurs physiques du problème sont adimensionnées, conformément à ce qui a été présenté précédemment dans la section "Adimensionnement du problème" du chapitre 2. Ce choix assure un meilleur conditionnement des systèmes à résoudre.

3.3 Intégration du terme source par Rabbi

Le calcul de la quantité de dihydrogène produite par radiolyse du bitume a fait l'objet d'une étude au CEA. Les nombreuses filiations des radionucléides lors de leur désintégration rendent ce calcul complexe. Pour déterminer le terme source, un code de calcul a donc été développé : RABBI [8]. Ce programme a été développé dans le langage C++, ce qui ne permet pas son intégration directe dans le code développé au cours de cette thèse sur Matlab. Adapter et réécrire ce code pour en faire une fonction appelée par notre programme aurait été chronophage. Il a donc été jugé plus judicieux d'enregistrer les résultats fournis par RABBI puis de les réouvrir avec le code de gonflement. Cependant, le calcul de terme source effectué par RABBI n'est pas complètement indépendant de notre programme (figure 3.2). L'utilisateur n'a besoin que de lancer notre programme (1), c'est ce dernier qui va ensuite commander le lancement de RABBI (2). L'utilisateur doit alors renseigner le spectre radiologique de référence ainsi que la durée de simulation de la radiolyse via l'interface graphique ouverte par RABBI (3). RABBI intègre ensuite les données renseignées par l'utilisateur (5) puis effectue le calcul de terme source et enregistre les résultats dans un fichier au format .xls (6), avec un nom spécifié par l'utilisateur. Ce même nom étant donné en paramètre d'entrée du code de gonflement, ce dernier est capable de l'ouvrir (7) pour en extraire les données de terme source et de dose intégrée en fonction du temps.

Une conversion des données est nécessaire lors de l'intégration du terme source fourni par RABBI. Ce dernier fournit en effet une production de gaz en litres par unité de masse d'enrobé, tandis que nous avons besoin pour notre modèle d'un terme source exprimé en kg de gaz par unité de volume d'enrobé. Cette conversion fait appel au volume molaire du dihydrogène ($V_m = 22{,}4\,\mathrm{L\,mol^{-1}}$), à la masse volumique de l'enrobé ρ_e (renseignée par l'utilisateur dans le code de gonflement), ainsi qu'à la masse molaire du dihydrogène (M=$2 \times 10^{-3}\,\mathrm{kg\,mol^{-1}}$).

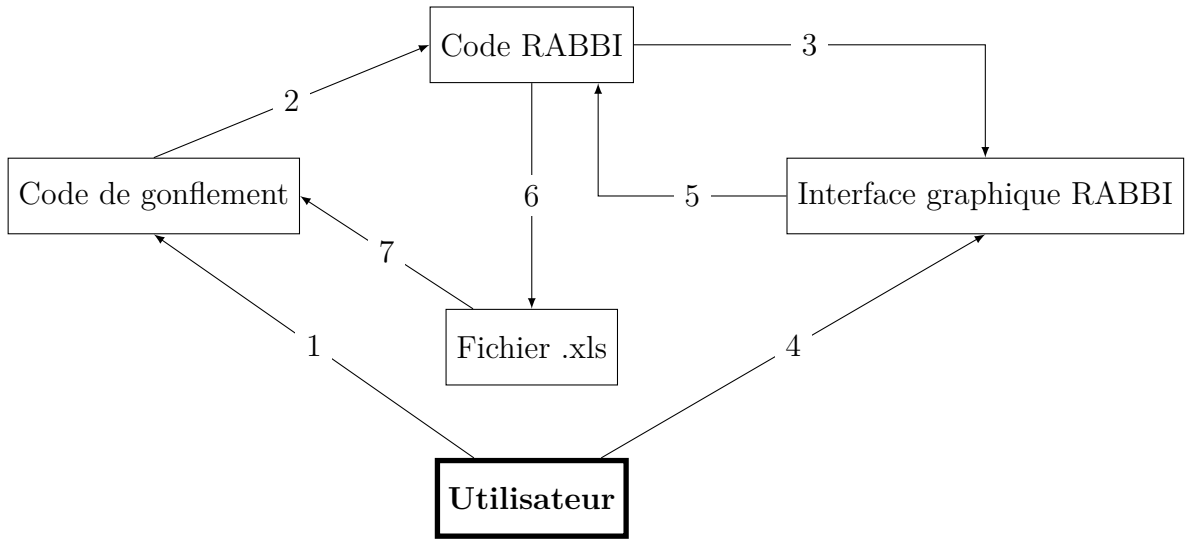


FIGURE 3.2 – Schéma du principe d'intégration du terme source calculé par le code RABBI

3.4 Discrétisation du problème

Pour résoudre un problème numériquement, il faut représenter des grandeurs physiques continues par des objets mathématiques discrets : c'est la discrétisation. Dans le code développé au cours de cette thèse, nous avons effectué cette opération dans deux dimensions ($\tilde{R}$ et z). La première consiste à passer d'une distribution continue de tailles de bulles à une distribution discrète par discrétisation aux différences finies, les bulles étant alors rangées par classe. Les valeurs de $\tilde{R}$ pour lesquelles la distribution discrète est définie sont appelés des nœuds et l'ensemble de ces nœuds constitue ce que nous appelons le maillage en $\tilde{R}$, $\tilde{R}$ faisant référence à la variable représentant le rayon adimensionné des bulles. Ce sera l'objet de la section suivante : adaptation du maillage en $\tilde{R}$.

La fonction $f(\tilde{R}, z, t)$ représente la densité de distribution de tailles de bulles par unité de volume. Pour connaître le nombre de bulles contenues dans une classe par unité de volume, il faut calculer l'intégrale de cette fonction entre les bornes de la classe, ce qui revient dans le cas d'une population discrète à :

$$\mathrm{Nb}^i_{\mathrm{bulles}} = \left(\tilde{R}^i_{sup} - \tilde{R}^i_{inf}\right) f^i(z,t) \tag{3.1}$$

$\mathrm{Nb}^i_{\mathrm{bulles}}$ étant le nombre de bulles contenues dans la classe d'indice i par unité de volume.

La deuxième discrétisation concerne la hauteur du fût. Numériquement, celui-ci sera représenté par un empilement de tranches horizontales de hauteurs variables (figure 3.3). Ces

tranches sont délimitées par des bornes verticales qui constituent ce que nous appellerons le maillage en z (z désignant la variable d'espace suivant l'axe du fût). L'adaptation de ce maillage au cours du temps sera présenté dans la section 3.6.

La hauteur sera la seule dimension spatiale discrétisée dans le code. La dimension géométrique radiale n'est pas prise en compte. Seule la surface des tranches du fût est considérée pour quantifier la quantité de gaz évacué par migration et diffusion.

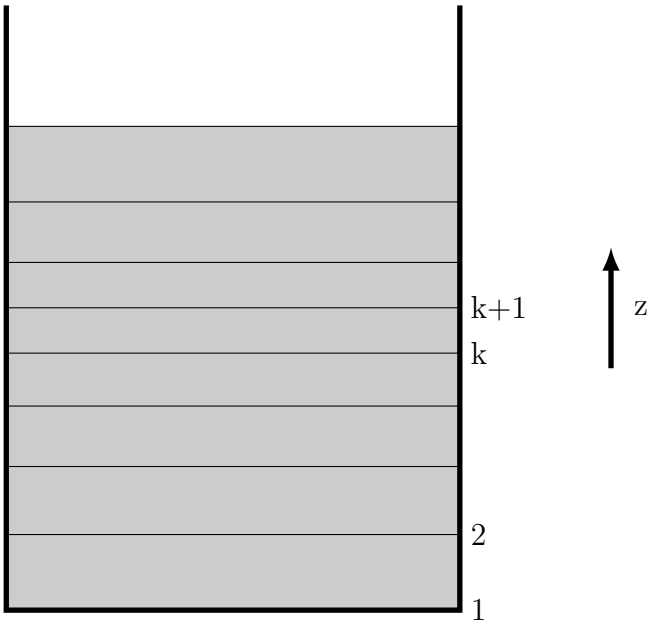


FIGURE 3.3 – Représentation des tranches d'un fût

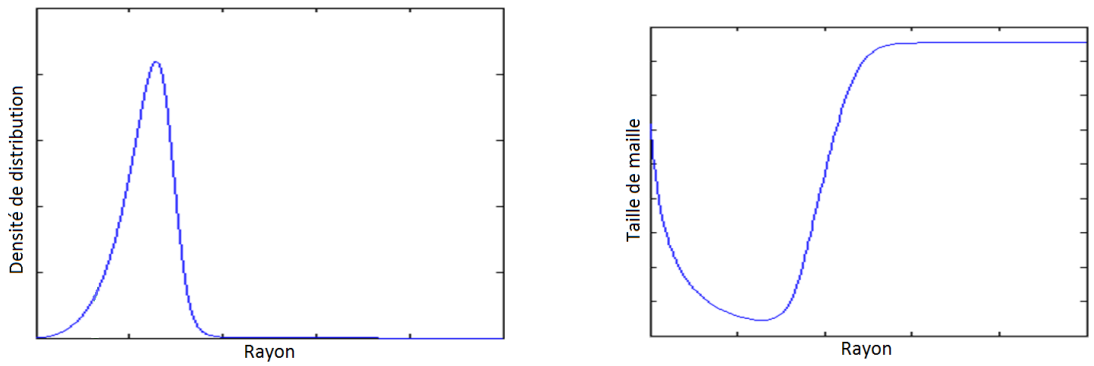
Dans la suite des équations et méthodes numériques présentées dans ce chapitre, l'indice j fera référence à la variable de temps (j et $j+1$ sont alors les numéros de deux itérations consécutives), i fera référence à la variable taille de bulle $\tilde{R}$ (i désignant l'indice des classes de bulles, avec i croissant en augmentant la taille des bulles) et k fera référence à la variable d'espace z (k désignant l'indice des tranches, avec k croissant en remontant dans le fût).

La finesse des maillages est un paramètre ajustable par l'utilisateur. A titre indicatif, pour les simulations numériques présentées dans ce travail, le nombre de nœuds sera de 150 pour le maillage en $\tilde{R}$ et 20 pour le maillage en z.

3.5 Adaptation du maillage en $\tilde{R}$

Par définition, la population de bulles présente dans le fût va évoluer au cours du temps (à cause de la migration et de la croissance notamment). Pour avoir une bonne précision des résultats, il va être utile d'avoir un maillage en $\tilde{R}$ qui s'adapte à la population [52].

On va en quelque sorte focaliser les nœuds du maillage sur des zones de la population qui nécessitent une attention particulière. Ces zones de focalisation vont être déterminées au moyen d'une fonction critère, choisie selon le type d'évolution à résoudre [53]. Cette fonction, définie sur le même maillage que la population, indiquera la densité de nœuds (et donc la finesse du maillage) en chaque endroit de la population. La taille de maille (amplitude des classes) dans les zones de focalisation sera alors plus faible qu'ailleurs (figure 3.4).



(a) Représentation de la fonction critère (b) Représentation de la taille de maille

FIGURE 3.4 – Illustration de l'adaptation de la taille de maille basée sur une fonction critère

Dans le code développé dans ce travail, le nombre de nœuds constituant le maillage en $\tilde{R}$ est fixe. Ainsi, avoir un maillage adaptable signifie que les nœuds vont pouvoir être répartis différemment d'une itération à l'autre, en gardant pour conditions aux limites les extrémités de la gamme totale de rayons à couvrir. Les classes de bulles n'auront donc pas toutes la même amplitude, comme illustré sur la figure 3.5 (l'amplitude est définie par la différence entre les deux bornes de la classe, les bornes étant en l'occurrence les nœuds du maillage). L'amplitude des classes sera inversement proportionnelle à la densité de nœuds définie par la fonction critère :

$$\mathrm{fc}^i \cdot \mathrm{w}^i = \text{constante } \forall i \tag{3.2}$$

où fc^i désigne la valeur de la fonction critère au nœud i, et $\mathrm{w}_i = \tilde{R}_{i+1} - \tilde{R}_i$ est l'amplitude de la classe d'indice i.

Numériquement, on va résoudre l'équation (3.3) pour définir le nouveau maillage, où l'inconnue est la fonction taille de maille (amplitude des classes) w. Elle impliquera par la suite la répartition des nœuds dans la gamme de rayons à couvrir. Les conditions aux limites sont que les points extrémités du maillage ne bougent pas.

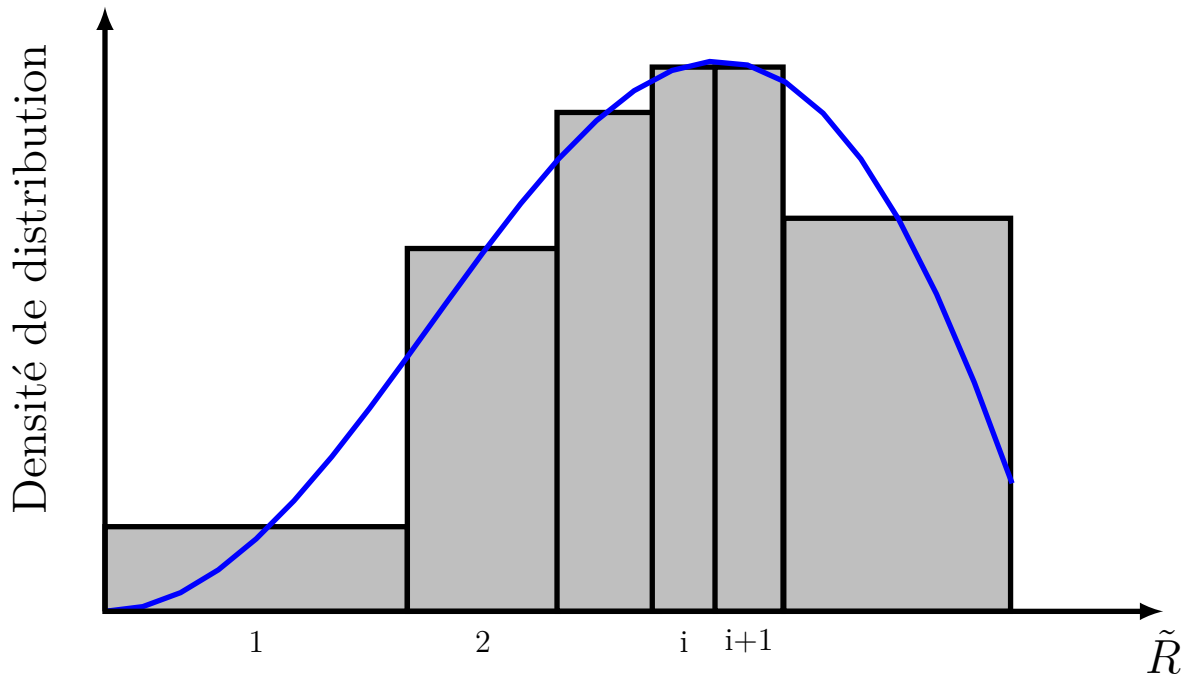


FIGURE 3.5 – Discrétisation de la population de bulles

$$\frac{\partial}{\partial i}\left(\mathrm{fc}^i \cdot \mathrm{w}^i\right) = 0 \ \forall i \tag{3.3}$$

où $\frac{\partial}{\partial i}$ est la dérivée suivant l'indice des classes.

Pour illustrer la relation entre la fonction critère, la densité de nœuds et le maillage correspondant, nous allons considérer une fonction critère dont la valeur est égale en chaque point du maillage à la densité de distribution de bulles. Cette finesse de maillage proportionnelle à la densité de bulles implique que l'amplitude des classes sera petite là où la densité de bulles est élevée et inversement. Après avoir adapté le maillage selon ce critère, on aura des classes d'amplitudes différentes mais contenant toutes le même nombre de bulles. En effet, dans ce cas, $\mathrm{fc}_i = \mathrm{f}_i$, f étant la densité de distribution de tailles. L'équation (3.2) peut alors être réécrite comme cela :

$$f^i\left(\tilde{R}^{i+1} - \tilde{R}^i\right) = \text{constante} \ \forall i \tag{3.4}$$

Or, l'équation (3.4) est équivalente à l'équation (3.1), ce qui nous indique bien que chaque classe contient le même nombre de bulles.

Le remaillage suit un algorithme itératif : pour un même incrément de temps, plusieurs itérations de remaillage peuvent être réalisées jusqu'à ce que la densité de maille soit suffisamment proche de la densité de maille idéale. Néanmoins, une seule itération est faite dans notre cas car elle est suffisante et permet un gain de temps de calcul.

Après avoir déterminé la répartition optimale des nœuds et avoir défini le nouveau maillage en $\tilde{R}$, il faut calculer les valeurs de la densité de distribution aux nœuds du nouveau maillage. Pour cela, la densité de bulles initiale (qui est une fonction discrète) est interpolée linéairement, c'est-à-dire qu'on recrée une fonction continue représentant la densité de bulles, en reliant les points de la fonction discrète par des droites. La figure 3.6 illustre l'interpolation linéaire, où les points bleus représentent les valeurs de la fonction discrète de densité de distribution et la courbe noire la fonction d'interpolation linéaire correspondante. Cette fonction continue est ensuite projetée sur le nouveau maillage, de manière à obtenir une fonction discrète représentant la densité de distribution de bulles aux nœuds du nouveau maillage.

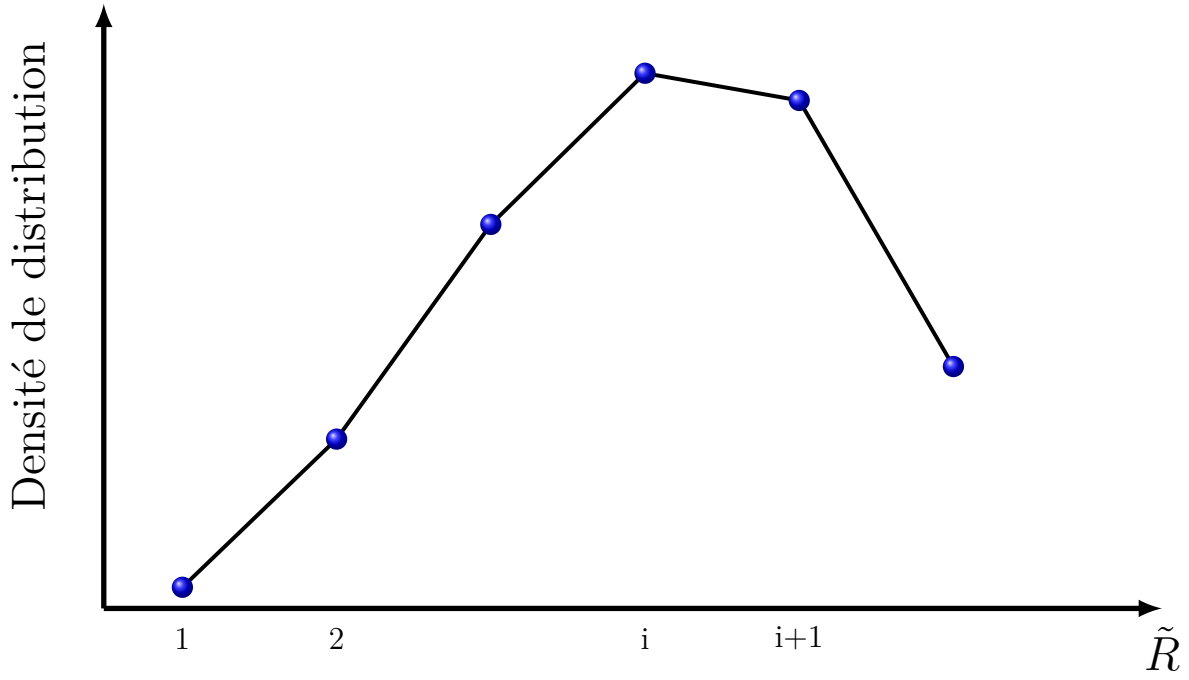


FIGURE 3.6 – Principe d'interpolation linéaire

Il est important de noter que la densité de nœuds représentée par la fonction critère fc n'est nulle en aucun point. En effet, après avoir défini sa forme, on lui rajoute une constante en chaque point. Cela permet de garder un densité minimale de nœuds sur toute la gamme qui doit être couverte. On laisse en quelque sorte des nœuds en veille, cela permet d'améliorer la précision des résultats, notamment dans le cas où de brusques évolutions de la population auraient lieu. Dans notre cas d'étude, la fonction critère est définie par fc $= grad(\dot{\tilde{R}}f)$, car elle apporte une grande finesse de maillage dans les zones où nous avons une forte évolution de la population de bulles [53].

Toute la démarche présentée ci-dessus pour l'adaptation de maillage est répétée pour chaque tranche du fût. En effet, les tranches ne présentant par les mêmes populations de bulles, il a été jugé préférable que l'adaptation du maillage en $\tilde{R}$ puisse être menée indépendamment sur chaque tranche, de manière à optimiser la précision du code. Cela ne présente qu'un léger inconvénient lors du calcul de la migration des bulles, car les nœuds des maillages en $\tilde{R}$ de deux tranches s'échangeant des bulles ne correspondent pas. Le contournement de cet obstacle numérique est présenté plus loin dans ce chapitre, dans la section 3.8.5.

Dans un souci de conservation de la masse, une étape supplémentaire est nécessaire après le remaillage en $\tilde{R}$. Le volume de la population définie sur l'ancien maillage ainsi que celui de la population définie sur le nouveau maillage après interpolation sont calculés. La nouvelle population après remaillage est multipliée par le rapport des deux volumes pré-cités pour s'assurer qu'il n'y a pas eu de gain ou de perte numérique de masse de gaz. En pratique, la perte est de l'ordre du millionième mais la correction est tout de même réalisée pour avoir une conservation de masse parfaite.

3.6 Adaptation du maillage en z

La méthode d'adaptation du maillage en z est sensiblement la même que celle décrite précédemment pour le remaillage en $\tilde{R}$. La principale différence réside dans le fait qu'ici un seul remaillage est effectué pour toutes les classes de bulles (contrairement au cas précédent où un remaillage était effectué pour chaque tranche). En clair, cela signifie que les tranches resteront des sections horizontales non déformées.

La fonction critère est ici définie par le gradient vertical de concentration en gaz dissous. L'objectif est ainsi de limiter les sauts de concentration d'une tranche à une autre et d'avoir une évolution régulière de la concentration entre deux tranches consécutives, cela limite la diffusion inhérente à la méthode VOF (Volume Of Fluids) [54, 55] :

$$\frac{\partial}{\partial k}\left(grad(s(z))\left(z^{k+1}-z^{k}\right)\right)=0\ \forall k \tag{3.5}$$

où k représente l'indice des tranches et $grad(s(z))$ est la fonction définie par le gradient de concentration suivant l'axe du fût.

La difficulté rencontrée lors de l'adaptation du maillage en z est que les maillages en $\tilde{R}$ sont différents d'une tranche à une autre. Ainsi, après détermination de la position des nœuds du nouveau maillage vertical, il faut déterminer la nouvelle localisation des nœuds du maillage en $\tilde{R}$ pour chaque tranche. L'emplacement sur l'axe des $\tilde{R}$ d'un nœud (i,k_{new}) pourra par exemple être à cheval entre les positions, sur l'axe des $\tilde{R}$, des nœuds (i,k) et $(i,k+1)$, comme illustré sur la figure 3.7. Pour déterminer ces emplacements, il va

falloir interpoler la fonction $\tilde{R}^i(k)$ définie sur l'ancien maillage en z, puis la projeter sur le nouveau maillage en z.

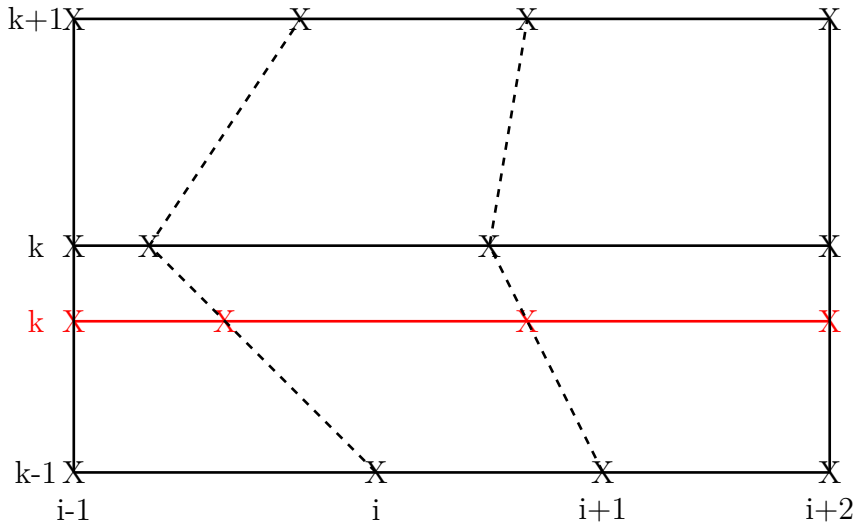


FIGURE 3.7 – Localisation des nœuds du maillage en $\tilde{R}$ après remaillage en z

Sur la figure 3.7, la couleur noire fait référence à l'ancien maillage (avant remaillage en z), et la couleur rouge au nouveau maillage. On constate que le maillage n'est pas modifié sur les bords, car les bornes du maillage sont fixes. Les traits en pointillés illustrent la méthode d'interpolation pour déterminer l'emplacement des nouveaux nœuds du maillage en $\tilde{R}$.

Après avoir déterminé les nouveaux emplacements des nœuds du maillage complet, il va falloir calculer les valeurs de la densité de distribution de bulles à ces nouveaux nœuds. Pour cela, on va repérer sur quelles anciennes tranches du fût empiètent les nouvelles tranches. On va ensuite attribuer à une nouvelle tranche une proportion de bulles de l'ancienne tranche qu'elle recouvre, cette proportion étant égale au ratio de la hauteur de l'ancienne tranche recouverte par la nouvelle sur la hauteur totale de l'ancienne tranche. Après avoir déterminé la proportion de la population de bulles d'une ancienne tranche assignée à une nouvelle tranche, il nous faut interpoler cette population puis la projeter sur le maillage en $\tilde{R}$ de la nouvelle tranche qui va accueillir les bulles. Une étape de conservation de masse est rajoutée après la projection de la population, de manière analogue à ce qui a été présenté précédemment dans la section consacrée à l'adaptation du maillage en $\tilde{R}$.

3.7 Calcul du terme source et de la dose intégrée

Le terme source et la dose intégrée en fonction du temps fournies par le code RABBI sont des données discrètes : on ne connaît leurs valeurs que pour des instants donnés (par exemple tous les ans, tous les mois ou toutes les heures). Cette finesse de discrétisation

temporelle du calcul de RABBI est renseignée par l'utilisateur en même temps que le spectre radiologique initial. Néanmoins, quelle que soit cette finesse, les instants pour lesquels RABBI a fourni les valeurs ne correspondent pas forcément aux instants de calcul du code de gonflement. De plus, le pas de temps de ce dernier est variable et imprévisible (cf. section 3.9 sur l'adaptation du pas de temps), ce qui ne nous permet pas d'anticiper les instants pour lesquels il faudrait connaître le terme source et la dose intégrée. Ainsi, pour connaître ces valeurs à n'importe quel instant, on effectue une interpolation linéaire à partir des deux instants consécutifs du calcul de RABBI qui encadrent l'instant où les valeurs sont désirées. Pour une bonne finesse de discrétisation temporelle de RABBI (1 mois), l'interpolation linéaire n'induit que très peu d'erreur. En effet dans le cas des enrobés bitumineux, la décroissance radioactive moyenne (et donc la décroissance du terme source associé) a lieu sur plusieurs centaines d'années.

3.8 Résolution des équations d'évolution d'une population de bulles

La résolution du système d'équations régissant l'évolution de la population de bulles est réalisée en plusieurs étapes (décomposition de l'opérateur). L'équation de continuité est notamment résolue en deux étapes, la croissance et la migration ayant été découplées pour une question de gain de temps de calcul. En effet, résoudre ces deux mécanismes indépendamment nécessite l'utilisation d'opérateurs mathématiques (matrices) beaucoup moins gros, ce qui implique des temps de calcul plus faibles. Néanmoins, une résolution découplée peut induire une moins bonne précision des résultats. Un code avec résolution couplée a donc été développé et les résultats des deux méthodes ont été comparés pour un cas test représentant un fût réel. Les résultats étant identiques, nous avons pris la décision de ne développer par la suite que le code avec la résolution découplée de la croissance et de la migration.

Nous avons choisi de résoudre la croissance des bulles avant leur migration. Cet ordre est justifié par la facilité numérique de calcul du bilan de masse qu'il procure. Cet aspect sera présenté dans la section 3.8.2 consacrée à la mise à jour de la sursaturation.

La résolution s'articule en cinq étapes. Dans un premier temps, l'évolution de la population de bulles par simple croissance est calculée, on fait ici abstraction de la migration des bulles et de la germination. Mathématiquement, cela revient à résoudre l'équation :

$$\frac{\partial f(\tilde{R}, z, t)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial \tilde{R}} \left(\dot{\tilde{R}}(t) f(\tilde{R}, z, t) \right) = 0, \tag{3.6}$$

où f est la densité de distribution des bulles, $\tilde{R}$ représente le rayon des bulles, z la hauteur dans le fût et t le temps.

Dans un second temps, on répercute l'effet de la croissance des bulles sur la quantité de gaz dissous dans la matrice. Ensuite, la diffusion du gaz dissous suivant l'axe vertical dans le fût est prise en compte. A ce moment, un critère sur la concentration de gaz va être appliqué dans chaque tranche pour savoir si la germination de nouvelles bulles doit avoir lieu, et elle est effectuée si nécessaire. Enfin, la dernière étape de la résolution du système consiste à prendre en compte la migration des bulles par poussée d'Archimède. Cette étape correspond mathématiquement à la résolution de l'équation de continuité, en faisant abstraction de la croissance des bulles et de la germination :

$$\frac{\partial f(\tilde{R},z,t)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial z}\Big(v_z(\tilde{R},t)f(\tilde{R},z,t)\Big) = 0 \tag{3.7}$$

où v_z est la vitesse de migration des bulles.

La résolution présentée ci-dessus est simplifiée dans le cas où aucune bulle n'est encore présente dans le fût. En effet, s'il n'y a pas de bulles, il n'y a pas besoin de résoudre ni la croissance, ni la migration. Un simple bilan de masse en prenant en compte le terme source et la diffusion du gaz est effectué, puis le critère pour savoir si la germination doit avoir lieu est appliqué.

3.8.1 Croissance

La première étape de la résolution concerne la croissance des bulles. Cela consiste à résoudre l'équation (3.6) :

$$\frac{\partial f(\tilde{R},z,t)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial \tilde{R}}\Big(\dot{\tilde{R}}(t)f(\tilde{R},z,t)\Big) = 0$$

dont l'équivalent numérique est :

$$\frac{f^{j+1}-f^{j}}{\Delta t} = -D_1\Big(\dot{\tilde{R}}f^{j+1}\Big) \tag{3.8}$$

où f est un vecteur contenant les valeurs de la densité de distribution aux nœuds du maillage en $\tilde{R}$, Δt est un scalaire représentant le pas de temps, D_1 est une matrice représentant l'opérateur de dérivée d'ordre 1 selon la dimension $\tilde{R}$ et $\dot{\tilde{R}}$ est un vecteur contenant les valeurs des vitesses de croissance des bulles aux nœuds du maillage en $\tilde{R}$. Notons ici que le choix de résolution par schéma d'Euler implicite implique la présence de f^{j+1} et non de f^j (qui aurait alors été un schéma explicite) dans le membre de droite. Cette méthode présente l'avantage d'être stable dans notre cas. La condition de stabilité découle

de l'équation 3.8, en notant le choix d'un opérateur D_1 décentré amont :

$$\frac{f^{j+1} - f^j}{\Delta t} = -D_1\left(\dot{\tilde{R}} f^{j+1}\right) \tag{3.9}$$

$$\Rightarrow \quad \frac{f_i^{j+1} - f_i^j}{\Delta t} = -\frac{\dot{\tilde{R}}_i f_i^{j+1} - \dot{\tilde{R}}_{i-1} f_{i-1}^{j+1}}{\Delta \tilde{R}} \tag{3.10}$$

$$\Rightarrow \quad f_i^{j+1}\left(1 + \dot{\tilde{R}}_i \frac{\Delta t}{\Delta \tilde{R}}\right) - \frac{\Delta t}{\Delta \tilde{R}} \dot{\tilde{R}}_{i-1} f_{i-1}^{j+1} = f_i^j \tag{3.11}$$

$$\Rightarrow \quad \text{Critère de stabilité : } \dot{\tilde{R}}_i \frac{\Delta t}{\Delta \tilde{R}} > -1 \tag{3.12}$$

Ce schéma est inconditionnellement stable pour des bulles en croissance ($\dot{\tilde{R}} > 0$). La condition n'est pas automatique dans le cas de bulles en décroissance, néanmoins ce schéma a été conservé car aucune instabilité n'a été constatée. Si tel avait été le cas, un schéma de Crank-Nicolson aurait pu être envisagé [56].

On peut ensuite réécrire cette équation de la sorte :

$$\left(I + \Delta t D_1 \dot{\tilde{R}}\right) f^{j+1} = f^j \tag{3.13}$$

$$\Rightarrow \quad M_c f^{j+1} = N_c f^j \tag{3.14}$$

I étant la matrice identité, $M_c = I + \Delta t D_1 \dot{\tilde{R}}$ et $N_c = I$. L'équation de résolution de la croissance implémentée dans le code est alors :

$$f^{j+1} = M_c^{-1}\left(N_c f^j\right) \tag{3.15}$$

3.8.2 Mise à jour de la sursaturation

Comme décrit dans l'introduction de cette section sur la résolution des équations du système, le bilan de masse est calculé directement après avoir pris en compte la croissance des bulles. Nous devons néanmoins faire un bilan de masse dans chaque tranche du fût car celles-ci s'échangent du gaz par migration de bulles et diffusion de gaz, ce qui fait qu'il n'y a pas conservation de la masse de gaz dans chaque tranche.

Le bilan de masse correspond en réalité au calcul de l'évolution de la concentration en gaz dissous. La méthode développée pour cela est de calculer la variation de concentration imputable à la croissance des bulles et à l'apport de gaz par terme source uniquement. La concentration à un instant donné est donc calculée à partir de la concentration à l'itération précédente en rajoutant le gaz créé par radiolyse et en enlevant la quantité de gaz prélevée par les bulles pour leur croissance. Les variations de concentration dues à la diffusion du gaz et à la germination (si elle a lieu d'être) sont prises en compte indépendamment juste après ce bilan de masse (cf. sections suivantes). L'évolution de la concentration pour chaque tranche après prise en compte de la croissance et du terme source est alors décrite par :

$$s^{j+1,k} = s^{j,k} + \dot{S} - \int_0^\infty \frac{4\pi}{3}\tilde{R}^3 \left(f^{j+1,k}(\tilde{R}) - f^{j,k}(\tilde{R})\right) s_i(\tilde{R}) d\tilde{R} \tag{3.16}$$

où $\dot{S}$ représente le terme source, $s^{j,k}$ la concentration en gaz dissous à l'instant j dans la tranche k et V^k le volume de la tranche k. Il est à noter que l'indice i ici présent dans s_i ne désigne pas un nœud du maillage en $\tilde{R}$ mais fait référence à la notation définie au chapitre 2 de la concentration adimensionnée de gaz à l'intérieur d'une bulle.

3.8.3 Diffusion de gaz en hauteur

La résolution de la diffusion de gaz dans le fût suivant la direction verticale est analogue à la résolution de la croissance, c'est-à-dire par schéma d'Euler implicite (schéma aux différences finies). Les valeurs sont prises à la base de la cellule. On rajoute seulement ici une condition de Dirichlet en haut du fût : on impose une concentration en gaz dissous nulle à la surface du bitume. L'équation de diffusion selon l'axe vertical s'écrit :

$$\frac{\partial s(z,t)}{\partial t} = D\frac{\partial^2 s(z,t)}{\partial z^2} \tag{3.17}$$

dont l'équivalent numérique est :

$$\frac{s^{j+1} - s^j}{\Delta t} = D D_2 s^{j+1} \tag{3.18}$$

où s^j est un vecteur contenant les valeurs de concentration en gaz dissous pour chaque tranche à l'instant j, D est le coefficient de diffusion du dihydrogène dans la matrice, D_2 est une matrice représentant l'opérateur de dérivée centrée d'ordre 2 selon la dimension z et z la hauteur dans le fût. Ce schéma présente l'avantage d'être inconditionnellement stable. Dans le cas où un schéma explicite aurait été choisi, la condition de stabilité serait

donnée par une condition sur le nombre de Fourier $(D\Delta t/(\Delta z)^2)$:

$$0 \leq D\frac{\Delta t}{(\Delta z)^2} \leq \frac{1}{2} \tag{3.19}$$

Ainsi, une condition devrait être appliquée sur la valeur maximale que peut prendre le pas de temps pour que le schéma soit stable et la vitesse du code serait limitée. Le choix du schéma implicite permet donc d'avoir des temps de calcul plus courts.

On peut ensuite réécrire l'équation (3.18) comme suit :

$$(I - \Delta t D D_2)\, s^{j+1} = s^j \tag{3.20}$$

$$\Rightarrow \quad M_d s^{j+1} = N_d s^j \tag{3.21}$$

I étant la matrice identité, $M_d = I - \Delta t D D_2$ et $N_d = I$. La condition de Dirichlet est intégrée en modifiant la première ligne de la matrice M_d pour conserver une concentration nulle en surface du bitume durant toute la simulation. L'équation de résolution de la diffusion implémentée dans le code est alors :

$$s^{j+1} = M_d^{-1}\left(N_d s^j\right) \tag{3.22}$$

3.8.4 Germination

La germination est effectuée juste après avoir pris en considération les variations de concentration liées à la croissance des bulles, à l'apport de gaz par terme source et la diffusion du gaz. Elle consiste à ajouter de nouveaux germes à la population de bulles existantes. Pour savoir si la germination doit avoir lieu, un critère est appliqué à la sursaturation de chaque tranche. La germination est donc indépendante dans chacune des tranches du fût, ce qui est une conséquence de la dépendance de la concentration en fonction de la hauteur.

Deux méthodes ont été développées pour modéliser la germination, avec chacune un critère différent. Elles ont cependant un point commun : la forme de la distribution de germes qui va être insérée. Celle-ci est définie par l'utilisateur au début de la simulation : ce peut être une gaussienne, un créneau, un dirac (population monodisperse) ou encore des distributions multi-modales (plusieurs pics comme les bosses d'un chameau).

Germination seuil

La première méthode de germination consiste à regarder, pour chaque tranche, si la concentration obtenue précédemment dépasse la valeur seuil imposée par l'utilisateur. Si tel n'est pas le cas, on ne crée pas de germe. En revanche, si l'on dépasse le seuil autorisé, la différence entre la valeur actuelle de sursaturation et la valeur seuil correspond à la quantité de gaz qui va être convertie en germes (equation (3.23)). La sursaturation est ainsi plafonnée au niveau de la valeur seuil.

Cet excès de concentration dans une tranche est converti suivant l'équation suivante en volume de nouveaux germes à insérer :

$$V_{\text{germes}} = \left(s^k - s_{\text{seuil}}\right) V^k \tag{3.23}$$

V^k étant le volume de la tranche considérée, s^k la concentration en gaz dissous dans la tranche avant germination, V_{germes} le volume de germes total à insérer dans la tranche et s_{seuil} la concentration seuil.

Le paramètre clé dans la germination est le volume total de gaz que la distribution de germes introduits représente. Comme la forme de la distribution de bulles est imposée par l'utilisateur (via la limite de concentration au-delà de laquelle on rajoute des germes), le seul moyen pour introduire un volume défini de gaz est de jouer sur le nombre de germes insérés. Pour cela, la distribution de germes est normée : on divise le nombre de bulles de chaque classe par le volume total que représente la distribution (equation (3.24), ce qui nous donne une population de volume unitaire $\tilde{f}g$:

$$\tilde{f}g(\tilde{R}) = \frac{\text{fg}(\tilde{R})}{\displaystyle\int_0^\infty \left(\tilde{R}^3 \text{fg}(\tilde{R})\right) d\tilde{R}} \tag{3.24}$$

et la population de germes insérés est ensuite obtenue en faisant le produit de la population normée par le volume de gaz désiré (equation (3.25)). Elle est par la suite simplement ajoutée à la population existante $f(\tilde{R}, z, t)$.

$$\text{fg}_{\text{insérée}}(\tilde{R}) = V_{\text{germes}} \cdot \tilde{f}g(\tilde{R}) \tag{3.25}$$

Germination continue

Le critère de germination de cette deuxième méthode est basé sur le calcul de la différence entre la concentration à l'itération actuelle et la concentration à l'itération précédente. Si

cette différence est négative, aucune germination n'a lieu car la matrice est déjà en train de s'appauvrir en gaz consécutivement à la croissance des bulles. Si la différence est nulle, la germination n'a pas lieu non plus car le système est dans un état d'équilibre. En revanche, si cette différence est positive, la sursaturation est en train d'augmenter et l'on estime alors qu'il y a un déficit de bulles. Elles ne pompent pas assez de gaz pour contrebalancer le terme source et on va donc insérer de nouvelles bulles pour rétablir l'équilibre.

Le calcul du volume de germes à insérer est basé sur l'augmentation de concentration entre les deux itérations. Un paramètre a, défini par l'utilisateur (compris entre 0 et 1), donne le pourcentage de l'augmentation de concentration qui va être ôtée à la matrice et convertie en nouveaux germes (conformément à l'équation (3.26)). De cette manière, on limite l'augmentation de concentration et l'on augmente le pompage des bulles (puisqu'elles sont plus nombreuses). On essaie ainsi de ramener le système vers un état d'équilibre entre création de gaz et pompage par les bulles.

$$V_{\text{germes}} = a\left(s^{j+1,k} - s^{j,k}\right)V^k \tag{3.26}$$

Une différence à noter entre cette méthode et celle de germination seuil est le fait qu'ici la taille des germes insérés est variable en fonction du temps. En effet, avec cette méthode, les bornes de la distribution de germes varient car elles sont définies par la valeur de la concentration en gaz dissous au moment de la germination. Contrairement au cas de la germination seuil, la concentration n'est ici pas plafonnée : la germination peut survenir pour n'importe quelle valeur de concentration. Néanmoins, la distribution de germes est normée de la même manière que pour la méthode précédente, conformément à l'équation (3.24) et la distribution de germes insérés est également calculée suivant l'équation (3.25).

3.8.5 Migration

Contrairement à la croissance et à la diffusion du gaz, la migration n'est pas résolue à l'aide d'un schéma d'Euler, mais par calcul direct du flux de bulles d'une tranche à une autre. Cette méthode présente l'avantage d'être parfaitement conservative et nécessite un temps de calcul plus court. Dans le code actuel, à partir de la taille des bulles et de la hauteur des tranches, une condition est imposée sur le pas de temps pour que les bulles ne puissent pas parcourir une distance supérieure à la hauteur d'une tranche entre deux itérations. En un pas de temps, les bulles ne peuvent donc passer que dans la tranche immédiatement supérieure à celle où elles se trouvaient précédemment.

Le calcul de la quantité de bulles qui vont migrer d'une tranche vers la tranche supérieure est effectué indépendamment pour chaque classe de taille. Pour chacune d'elles, on détermine la distance que les bulles ont parcouru dans l'intervalle de temps égal au pas de temps du code. Elle est calculée en multipliant le pas de temps par la vitesse des bulles (équation (3.27)). Cette dernière est donnée par l'équation de Hadamard-Rybczynski ((1.9) donnée

au chapitre 1 [51, 6], en tenant compte de la dépendance de la viscosité en fonction de la dose reçue.

$$d^i = v_z^i \Delta t \tag{3.27}$$

où d^i représente la distance parcourue par les bulles de la classe i pendant l'incrément de temps Δt et v_z^i la vitesse des bulles de la classe i.

Cette distance est ensuite rapportée à la hauteur de la tranche considérée. Ce rapport nous donne la proportion de bulles de cette classe qui vont migrer vers la tranche supérieure (équation (3.28)).

$$\text{PropMig}^{i,k} = \frac{d^i}{\text{TailleTranche}^k} \tag{3.28}$$

où $\text{PropMig}^{i,k}$ désigne la proportion de bulles de la classe i de la tranche k qui vont migrer vers la tranche $k+1$ et TailleTranche^k la hauteur de la tranche k où se trouvent les bulles avant migration.

En recombinant les nombres de bulles de chaque classe qui vont migrer, on recrée une distribution migrant vers la tranche supérieure. Cette distribution est dans un premier temps retirée à la population de la tranche considérée. Elle sera ensuite ajoutée à la population de la tranche supérieure (figure 3.8).

Par conséquence de l'indépendance sur chaque tranche de l'adaptation de maillage en $\tilde{R}$, ce maillage peut être différent pour la tranche de départ des bulles et la tranche d'accueil. Nous devons pour cela interpoler cette distribution puis la projeter sur le maillage de la seconde tranche. Par souci de conservation de masse, nous calculons le volume total de la distribution définie sur le premier maillage ainsi que le volume de la distribution projetée sur le second maillage. La distribution projetée est alors multipliée par le rapport des deux volumes, de sorte qu'il y ait conservation de volume lors de l'étape de projection.

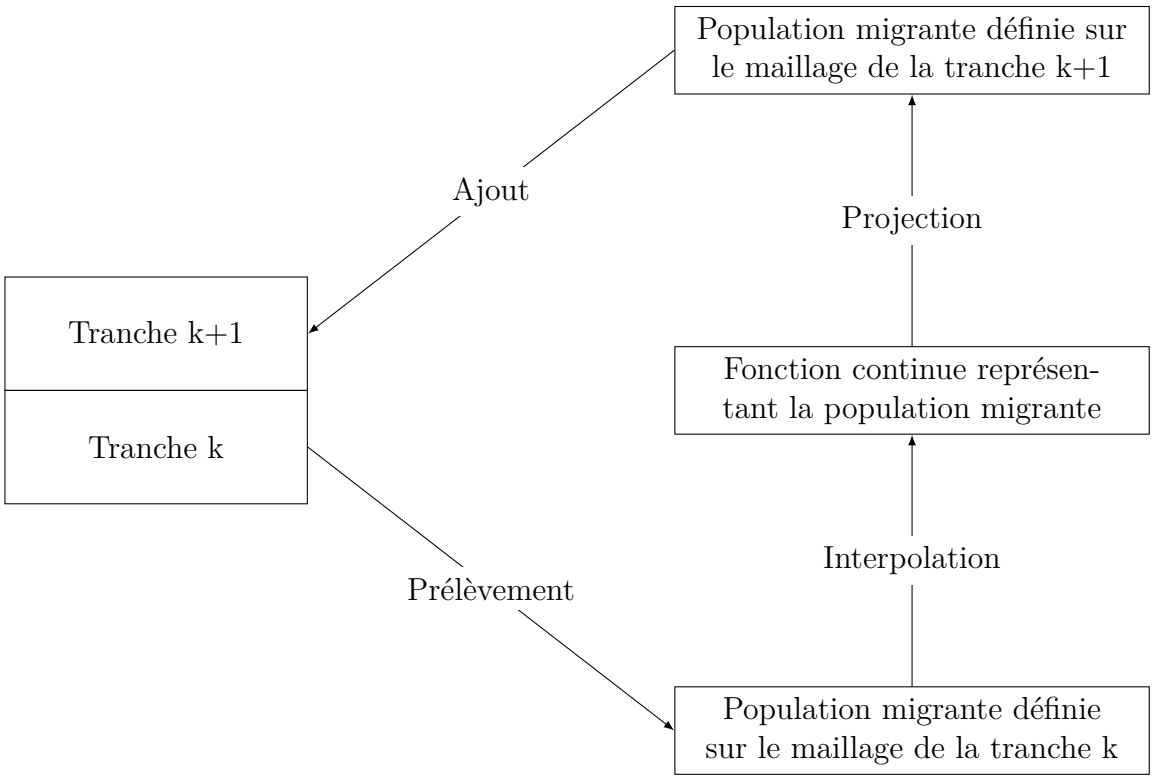


FIGURE 3.8 – Schéma de la méthode numérique de migration

3.9 Adaptation du pas de temps

Le code de gonflement développé dans ce travail est un code incrémental en temps. Il effectue la résolution d'un système d'équations à un instant donné, puis à un instant ultérieur et ainsi de suite. C'est une résolution de proche en proche. Dans ce type de programme, la valeur du pas de temps est une donnée de première importance. Si le pas de temps est trop grand, l'approximation d'Euler n'est plus valable et l'on s'écarte fortement de la solution. En revanche, si le pas de temps est trop petit, le résultat sera très proche de la solution mais les temps de calcul peuvent être déraisonnables, rendant le code inexploitable. Il est donc important de choisir une valeur du pas de temps adaptée au problème.

Les phénomènes modélisés dans ce travail s'effectuent à des échelles de temps variées. La germination implique par exemple des échelles de temps très courtes tandis que la migration des bulles implique des échelles de temps beaucoup plus longues. Il est alors nécessaire d'avoir un pas de temps évolutif, c'est-à-dire qui peut s'adapter au cours de la simulation selon les mécanismes mis en jeu. Cela permettra de décrire avec une bonne précision les phénomènes courts (le code diminuant le pas de temps au moment où ceux-ci ont lieu), tout en permettant d'explorer des échelles de temps longues (le code augmentant le pas de temps lorsqu'aucun mécanisme rapide n'a lieu).

Dans le code présenté ici, le critère d'adaptation du pas de temps est basé sur l'évolution de deux grandeurs modélisées : la population de bulles et la concentration en gaz dissous.

Schématiquement, avant une nouvelle résolution des équations, le temps est incrémenté. Puis, après celle-ci, on regarde si l'évolution des deux grandeurs pré-citées, entre les deux incréments de temps successifs, a été trop faible (auquel cas on choisira d'augmenter le pas de temps), ou trop importante (auquel cas le pas de temps sera diminué).

En ce qui concerne la concentration, nous considérons son évolution relative pour chaque tranche, notée DiffEps(k), définie par :

$$\text{DiffEps(k)} = \frac{\left|\varepsilon^{j,k} - \varepsilon^{j-1,k}\right|}{\varepsilon^{j,k}} \tag{3.29}$$

Pour ce qui est de la population de bulles, nous considérons son évolution relative de manière globale (c'est-à-dire en prenant le volume total des bulles) pour chaque tranche. Elle est notée DiffPhi(k) et est définie comme suit :

$$\text{DiffPhi(k)} = \frac{\left|\int_0^\infty \left(f^j(\tilde{R},z) - f^{j-1}(\tilde{R},z)\right)\tilde{R}^3 d\tilde{R}\right|}{\int_0^\infty f^{j-1}(\tilde{R},z)\tilde{R}^3 d\tilde{R}} \tag{3.30}$$

Nous avons fait le choix dans ce code d'avoir une ligne temporelle unique pour l'ensemble du fût. Nous ne permettons pas à une tranche d'être simulée plus vite qu'une autre, car elles communiquent et s'échangent du gaz (par diffusion) et des bulles (par migration). Cela nous impose de n'avoir qu'un marqueur global d'évolution de concentration (DiffEps_g) et un marqueur global d'évolution de population (DiffPhi_g) pour tout le fût, pour l'adaptation du pas de temps. Ces deux marqueurs globaux sont pris comme étant la moyenne des marqueurs de chaque tranche.

Deux critères sont ensuite appliqués à ces marqueurs (schématisés sur la figure 3.9) : un critère pour savoir si il faut augmenter le pas de temps et un critère pour savoir si il faut le diminuer. Le premier critère consiste à comparer la valeur maximum des deux marqueurs DiffPhi_g et DiffEps_g à une valeur critique définie par l'utilisateur (0,001 par exemple). Si ce maximum est inférieur à la valeur critique, il est jugé que l'évolution du système est lente et qu'il faut augmenter le pas de temps (il est multiplié par 2). Le second critère consiste à comparer la valeur maximum des deux marqueurs DiffPhi_g et DiffEps_g à une seconde valeur critique définie par l'utilisateur (0,01 par exemple). Si ce maximum est supérieur à cette valeur critique, l'évolution du système est jugée rapide et le pas de temps est diminué (il est divisé par 2). Ces deux critères permettent donc d'adapter le pas de temps en privilégiant la précision à la rapidité (par exemple si DiffPhi_g est inférieur à la première valeur critique mais que DiffEps_g est supérieure à la deuxième valeur critique, le pas de temps sera diminué). Dans le cas où le maximum des deux marqueurs est compris entre les deux valeurs critiques, le pas de temps reste inchangé.

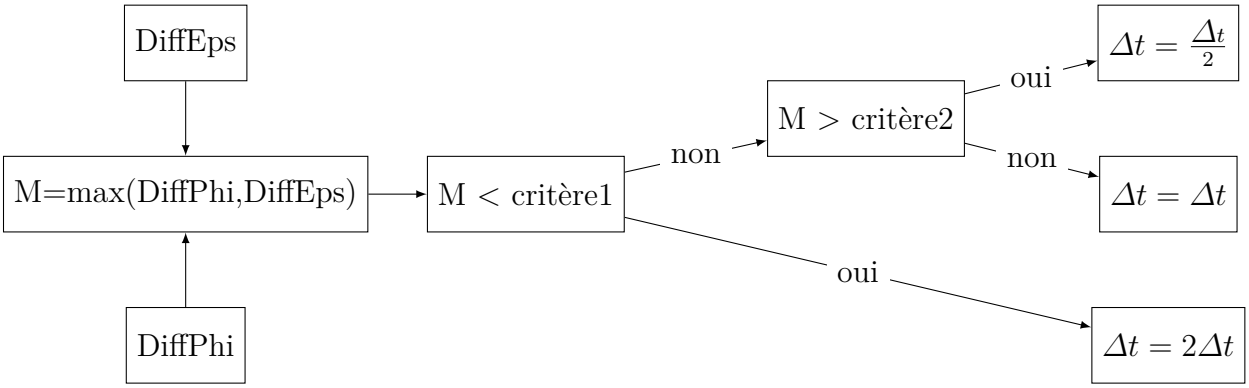


FIGURE 3.9 – Schéma du principe d'adaptation du pas de temps

3.10 Évolution de la viscosité - Loi de vieillissement

Le bitume est sensible aux rayonnements émis par les radionucléides qu'il contient et ses propriétés rhéologiques évoluent en fonction de la dose intégrée. Mouazen [5] a déterminé une loi de vieillissement des enrobés bitumineux de type STE3 soumis au rayonnement γ à un débit de dose de 4500 Gy/h. Dans ce code, nous allons utiliser la loi qu'il a obtenue lors de ses travaux de thèse pour calculer la viscosité de l'enrobé. Pour cela, il nous est nécessaire de connaître la dose totale reçue par le matériau à chaque incrément de temps. Elle est calculée à partir des données fournies par le code RABBI. La viscosité est donc mise à jour à chaque incrément de temps du code. La loi de vieillissement des enrobés bitumineux déterminée par Mouazen est :

$$\eta_{\text{Bitume pur}} = 8,9 \cdot 10^4 exp(\frac{D_i}{2,023}) + 3,49 \cdot 10^5$$

où D_i représente la dose intégrée en MGy, la viscosité étant en Pa.s.

L'enrobé est un matériau chargé et sa viscosité peut être décrite par une loi de Krieger Dougherty [57], le bitume étant la matrice et les sels jouant le rôle de charges :

$$\eta_{\text{Enrobé bitumineux}} = \eta_{\text{Bitume pur}}(D_i) \cdot \left(1 - \frac{\varphi_{eff}(D_i)}{\varphi_{max}}\right)^{-2}$$

où φ_{max} est la fraction d'empilement maximal, et φ_{eff} est la fraction volumique effective des sels qui dépend de la dose reçue.

3.11 Calcul du gonflement

Le gonflement est défini comme étant le rapport entre le volume total de bulles présentes dans le fût et le volume total d'enrobé dans le fût (qui est constant au cours du temps). Ainsi, lorsque l'on n'a aucune bulle, le gonflement est nul et il atteint 100% lorsqu'on a autant de volume de bulles que de volume d'enrobé. Un gonflement de 100% correspond donc à un volume total de matériau égal au double du volume initial.

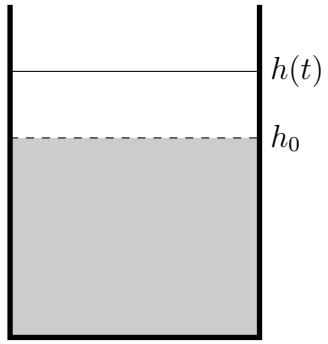


FIGURE 3.10 – Illustration du gonflement d'un fût

Numériquement, le gonflement est calculé en faisant la somme des volumes de toutes les bulles de toutes les classes de toutes les tranches du fût, puis en divisant ce résultat par le volume initial d'enrobé (somme des volumes initiaux de toutes les tranches) :

$$G(t) = \frac{\int_0^{h(t)} \left(\int_0^{\infty} \frac{4\pi}{3} \tilde{R}^3 f(\tilde{R}, z, t) d\tilde{R} \right) dz}{V_{\text{InitEnrobé}}} \tag{3.31}$$

où $G(t)$ désigne le gonflement, $h(t)$ la hauteur totale de matériau et $V_{\text{InitEnrobé}}$ le volume initial d'enrobé dans le fût.

Macroscopiquement, cela revient au même que l'équation (3.32), illustrée par la figure 3.10.

$$G(t) = \frac{h(t) - h_0}{h_0} \tag{3.32}$$

3.12 Calcul de l'évacuation de gaz par migration des bulles

La quantité totale de gaz évacué est déterminée via le calcul du débit de gaz sortant de la tranche supérieure du fût. Pour chaque incrément de temps, la migration des bulles présentes dans cette dernière tranche entraîne une évacuation de gaz. La méthode pour déterminer cette quantité évacuée est la même que celle qui nous permet de faire passer des bulles d'une tranche à une autre par migration (cf. section 3.8.5 de ce chapitre, équations (3.27) et (3.28)). La quantité de gaz évacué pour chaque classe correspond au volume représenté par l'ensemble des bulles de la classe qui sont sorties. Ainsi, la quantité de gaz évacué par migration pendant le pas de temps considéré correspond à la somme des quantités évacuées de toutes les classes :

$$\text{GazEvacue}^j = \int_0^\infty \left(\frac{4\pi}{3} \tilde{R}^3 f^{k_f,j}(\tilde{R}) s_i(\tilde{R}) \frac{v_z(\tilde{R})\Delta t}{\text{TailleTranche}^{k_f}} \right) d\tilde{R} \tag{3.33}$$

où GazEvacue^j correspond à la quantité de gaz évacué lors de l'itération j, k_f désigne l'indice de la dernière tranche du fût, $v_z(\tilde{R})$ la vitesse des bulles en fonction de leur taille, Δt le pas de temps et $\text{TailleTranche}^{k_f}$ l'épaisseur de la dernière tranche du fût.

L'évacuation totale de gaz est calculée en sommant les quantités évacuées pour chaque pas de temps depuis le début de la simulation, ce qui revient à intégrer le débit sortant de gaz sur la période simulée :

$$\text{GazEvacueTotal}^j = \Sigma_{x=1}^{j} \text{GazEvacue}^x \tag{3.34}$$

où GazEvacueTotal^j représente la quantité totale de gaz évacué jusqu'à l'itération j.

Chapitre 4

Prédictions du modèle et analyse du sens physique des résultats

Sommaire

4.1 Évolution sans migration et sans germination 98
4.1.1 Influence de la taille initiale des bulles 98
4.1.2 Influence du débit de dose 100
4.1.3 Influence du coefficient de diffusion 101
4.2 Évolution d'une population avec migration 102
4.2.1 Introduction des résultats des simulations numériques 102
4.2.2 Analyse détaillée d'une simulation 105
4.2.3 Étude de sensibilité 116
4.2.4 Discussion sur la modélisation de la germination 119
4.2.5 Discussion sur le pic initial de gonflement et sur la physique . . . 125
4.3 Comparaison avec les résultats expérimentaux 127
4.3.1 Échantillons irradiés industriellement à forts débits de dose . . . 127
4.3.2 Simulation d'un fût réel 129

Ce chapitre est consacré à l'analyse des résultats issus du code d'évolution d'une population de bulles dans un fluide newtonien. Une première partie concerne l'étude d'une population sans prise en compte de la migration des bulles. Par la suite, une étude de sensibilité du code sera présentée puis une discussion sur la modélisation de la germination sera présentée, en comparant notamment les résultats issus des deux méthodes présentées au chapitre 2. Enfin, les résultats obtenus numériquement au cours de ce travail seront comparés aux résultats expérimentaux obtenus par le CEA sur des échantillons d'enrobés bitumineux irradiés industriellement.

4.1 Évolution d'une population sans migration et sans germination

Cette partie a pour objectif de hiérarchiser les mécanismes mis en jeu lorsque les bulles sont petites (donc lorsque la migration est négligeable). En reprenant l'étude analytique précédente, on constate que l'hypothèse d'une convection négligeable n'est plus valide lorsque les bulles deviennent trop grosses. L'équation (2.68) nous indique que le volume impliqué par la convection est égal à celui impliqué par la croissance dès lors que les bulles atteignent une taille de l'ordre du millimètre pour les paramètres matériau de notre étude, en supposant une faible sursaturation ($\varepsilon = 0{,}01$) et une hauteur de tranche égale au diamètre des bulles $h = 2R$. Nous ne nous intéresserons donc dans cette partie qu'à l'évolution des bulles jusqu'à une taille de l'ordre du millimètre.

La germination n'est pas prise en compte dans cette partie. Les simulations présentées ci-après consistent à insérer une population initiale de bulles (de fraction volumique $\phi = 10\%$) et à suivre leur évolution au cours du temps. Les paramètres initiaux pris pour ces simulations sont une sursaturation initiale $\varepsilon_0 = 0,01$, un coefficient de diffusion $D = 5 \times 10^{-11}\,\mathrm{m\,s^{-1}}$ et un terme source $\dot{d} = 4{,}5$ Gy/h.

4.1.1 Influence de la taille initiale des bulles

L'intérêt de cette section est porté sur l'influence de la taille initiale des bulles insérées. Le but est de déterminer si la taille des bulles insérées par germination (lorsqu'elle sera prise en compte par la suite) revêt une importance. Pour cela, nous avons considéré l'évolution de deux populations de bulles, initialement de rayon moyen 9 µm et 60 µm (figure 4.1).

Ces deux populations de bulles sont soumises au mûrissement d'Ostwald. Nous constatons que, au bout de 1 jour, les deux populations sont très proches (figure 4.2). Elles ont convergé vers une forme asymptotique, comme décrite par le régime LSW [7] [27], et leur rayon moyen est quasiment identique (170 µm pour la population de rayon moyen initial 60 µm et 174 µm pour la population de rayon moyen initial 9 µm).

Si la migration avait été prise en compte, et en majorant son importance (c'est-à-dire en prenant la taille des bulles après un jour), les bulles se seraient déplacées de 12 µm. Leur taille au bout de 1 jour étant de l'ordre de 150 µm, la migration des bulles relativement à

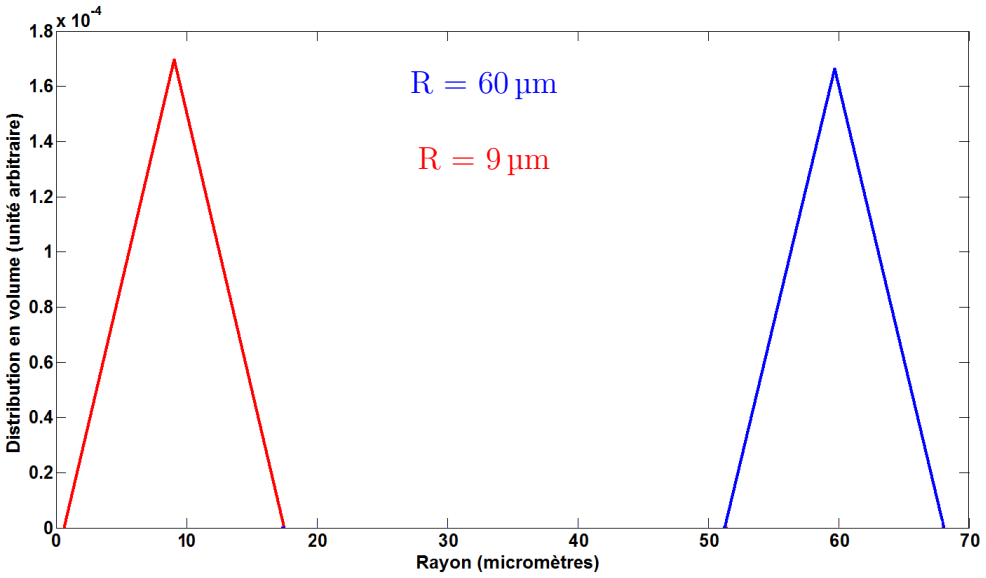


FIGURE 4.1 – Populations initialement insérées

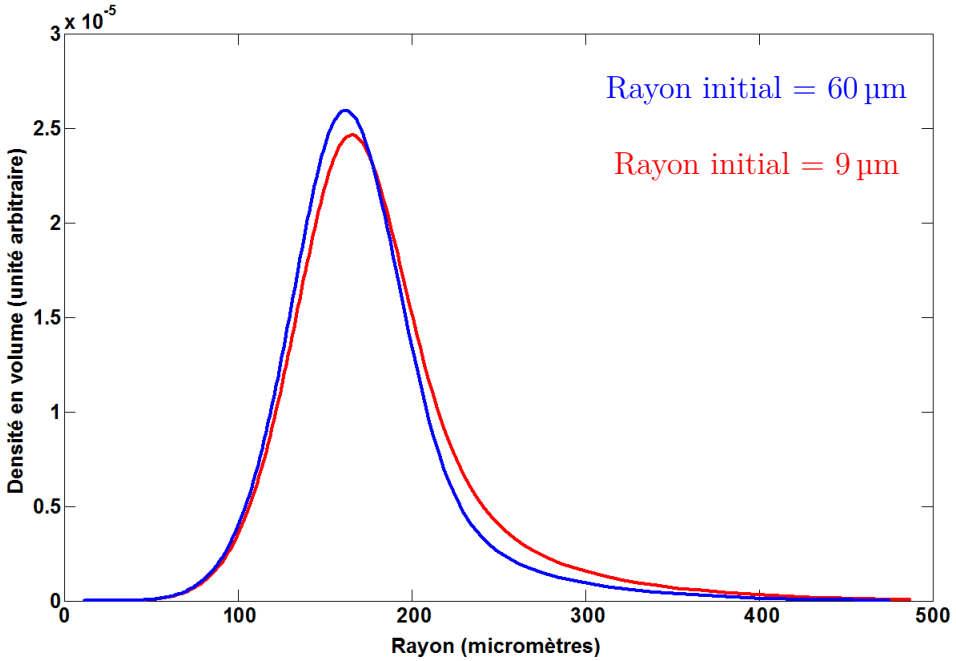


FIGURE 4.2 – Évolution des deux populations après un jour

leur taille est négligeable. On peut donc considérer qu'en deçà d'une taille de 60 µm, les bulles sont immobiles et la convergence de la population vers une forme asymptotique est très rapide. Par la suite, la taille des bulles insérées par germination sera de l'ordre de 60 µm.

4.1.2 Influence du débit de dose

Nous étudions ici l'influence du débit de dose sur l'évolution d'une population de bulles. Suite aux résultats de la section précédente, une population initiale de rayon moyen de 60 µm est insérée. Son évolution est considérée ici au bout de 3 mois, pour des débits de dose allant de 0 à 100 Gy/h.

La figure 4.3 nous indique sans surprise que le volume de la population au bout de 3 mois dans un fluide est proportionnel au débit de dose. En effet, s'il n'y avait pas de terme source, la population n'évoluerait que par mûrissement : les grosses bulles croitraient au détriment des petites et le volume total de la population serait conservé. Lorsqu'il y a un terme source, le volume total de la population va augmenter au cours du temps.

Néanmoins, il est intéressant de constater que l'évolution du rayon moyen de la population est sensiblement identique, quel que soit le terme source, comme le constat peut en être fait sur la figure 4.4 où les distributions normées sont représentées. Le fait que, au bout de 3 mois, les 3 populations aient des formes et des rayons moyens similaires indique que le mûrissement joue un rôle important. Il a fait converger les populations vers une forme LSW. On constate néanmoins que l'augmentation du débit de dose conduit à une population plus étroite, conformément aux résultats de Ratke et Beckermann [28].

Au vu de leur volume total et de leur rayon moyen après 3 mois, la principale différence entre ces populations réside dans le nombre de bulles présentes. En présence d'un terme source, les grosses bulles croissent toujours au détriment des plus petites, mais l'apport de gaz par radiolyse permet de maintenir une concentration en gaz dissous plus élevée et de diminuer le rayon limite de croissance/décroissance. Le terme source limite ainsi le nombre de bulles ayant décru, puis disparu, ce qui est en accord avec les travaux de Ratke et Beckermann [28]. Le volume total apporté par radiolyse devant être partagé par un nombre plus important de bulles, celles-ci ne peuvent pas croître beaucoup plus vite que dans le cas d'un débit de dose nul.

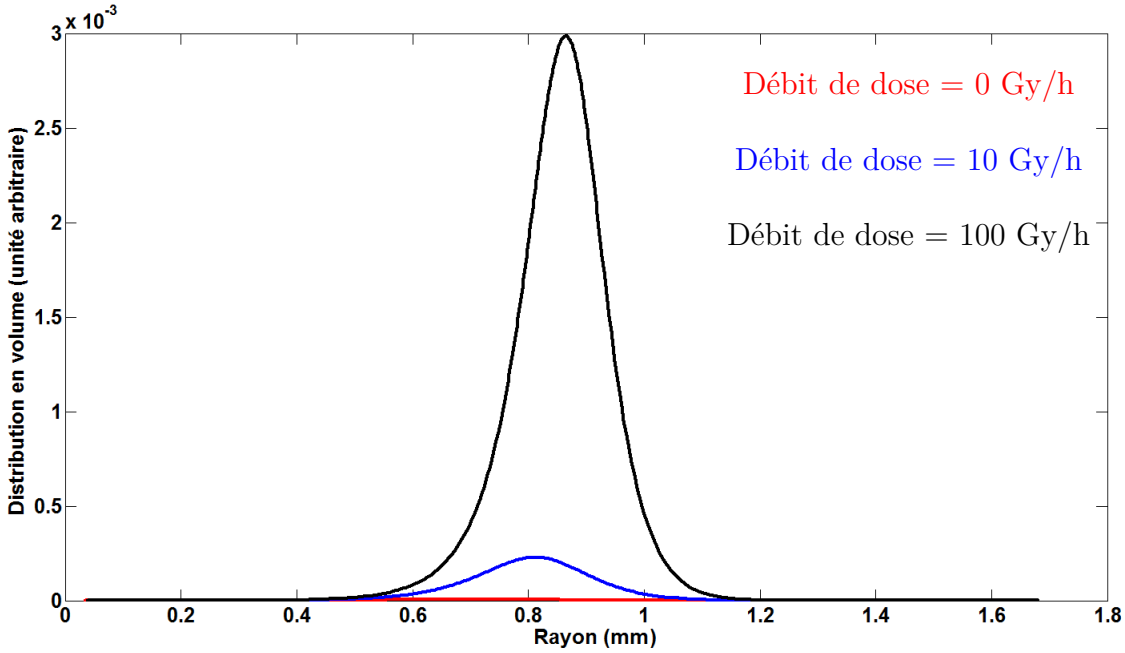


FIGURE 4.3 – Distributions en volume d'une même population initiale pour différents termes source au bout de 3 mois

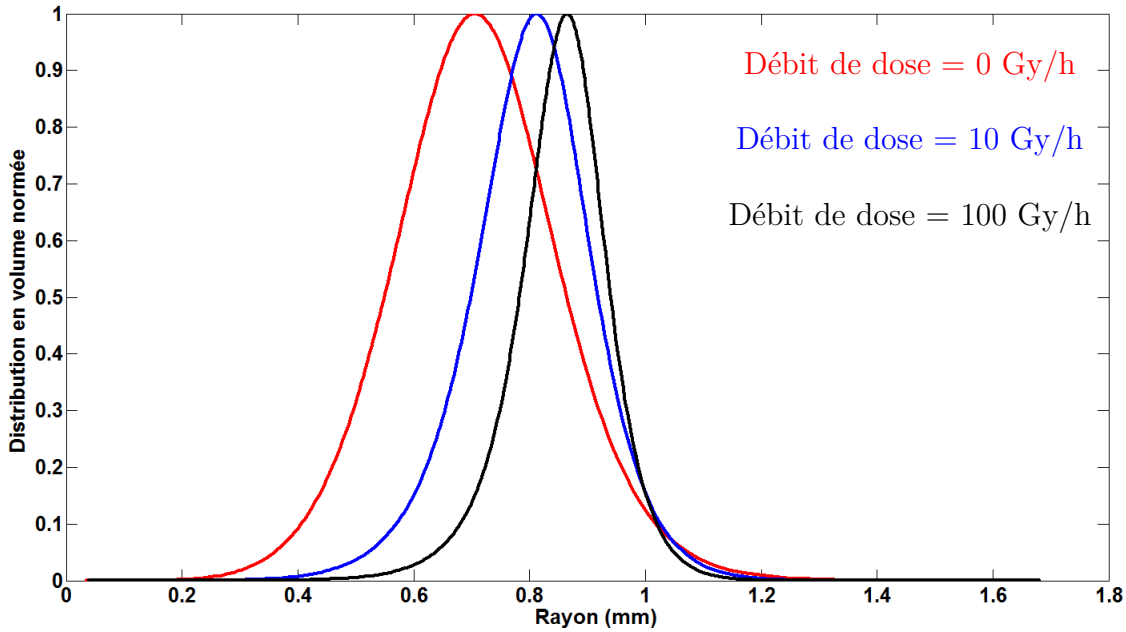


FIGURE 4.4 – Distributions en volume (normées) d'une même population initiale pour différents termes source au bout de 3 mois

4.1.3 Influence du coefficient de diffusion

Le coefficient de diffusion D a une influence sur la vitesse de croissance des bulles car il détermine la vitesse de diffusion du gaz de la matrice vers les bulles et nous avons

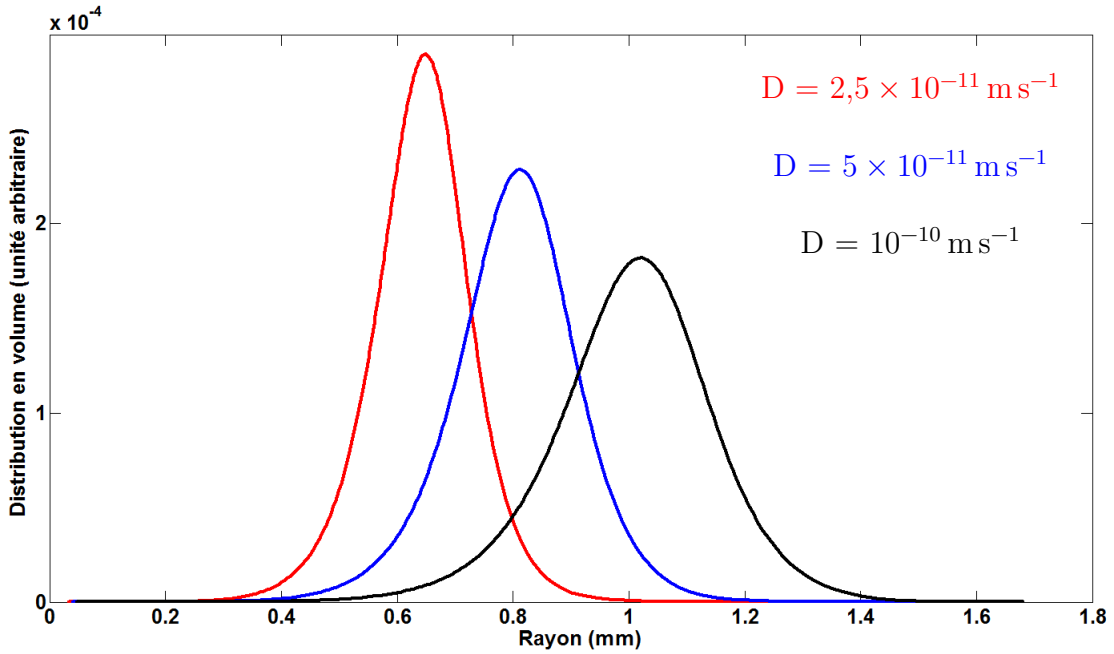


FIGURE 4.5 – Distributions en volume d'une même population initiale dans des fluides de différents coefficients de diffusion au bout de 3 mois

montré au chapitre 2 que la diffusion était le mécanisme limitant pour la cinétique de croissance. Augmenter D augmente donc la vitesse de croissance des bulles, mais cela favorise également le mûrissement. En effet, ce dernier est la conséquence d'un flux de gaz induit par un gradient de concentration en gaz dissous entre des bulles de tailles différentes.

En observant la figure 4.5 représentant l'évolution d'une population pour des valeurs différentes de D, on constate bien qu'une augmentation du coefficient de diffusion accélère le mûrissement, ce qui en accord avec la littérature [41, 42, 43]. On voit aussi que, quelle que soit la valeur du coefficient de diffusion, le volume total de la population est le même. En revanche, plus D est grand, plus la population a un rayon moyen élevé et moins le nombre de bulles est important. C'est la conséquence d'un mûrissement plus prononcé : il y a plus de petites bulles qui ont disparu et les grosses bulles ont crû plus vite.

4.2 Évolution d'une population de bulles en tenant compte de la migration

4.2.1 Introduction des résultats des simulations numériques

Les paramètres numériques choisis pour réaliser les simulations présentées dans cette section sont une grille de 150 noeuds pour le maillage permettant de discrétiser la population de bulles et une discrétisation du récipient en 20 tranches. Le choix de la géométrie de référence s'est porté sur un échantillon de 8 cm de hauteur et 8 cm de diamètre pour deux raisons :

- Premièrement, dans un souci de temps de calcul, car les simulations présentées ici nécessitent plusieurs heures de calcul. Prendre la géométrie d'un fût réel aurait nécessité d'augmenter le nombre de noeuds des maillages et aurait considérablement augmenté les temps de calcul. Néanmoins, une simulation représentant un fût réel de 65 cm de hauteur sera présentée en fin de chapitre.

- Deuxièmement, dans un souci de comparaison des résultats avec les résultats expérimentaux obtenus par le CEA. Des échantillons de 8 cm de hauteur et de 8 cm de diamètre ont en effet été soumis à des irradiations externes, pour différents débits de dose. Ces données nous permettront de tirer des conclusions sur la validité du modèle et du code numérique développé pour le résoudre.

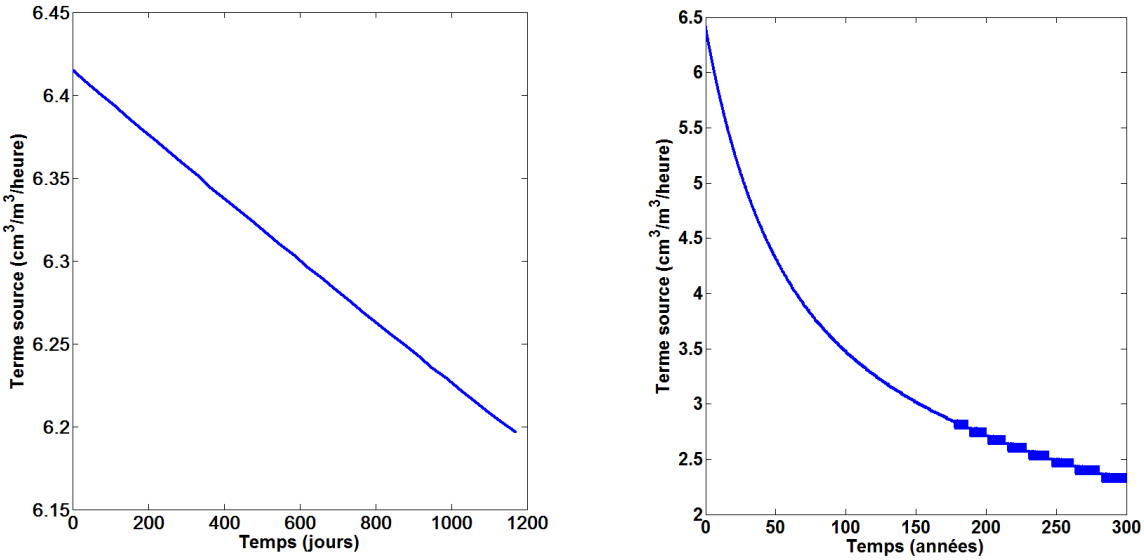
Les paramètres matériaux de référence des simulations sont ceux représentant un enrobé de bitume industriel de type STE3 : une viscosité évolutive en fonction de la dose reçue, de valeur initiale $\eta_0 = 10^6\,\mathrm{Pa\,s}$, une concentration à saturation $c_s = 2{,}7\,\mathrm{g\,m^{-3}}$, une solubilité $S_o = 0{,}03$, un débit de dose $\dot{d} = 4{,}5\,\mathrm{Gy\,h^{-1}}$, une différence de masse volumique entre l'enrobé et le gaz $\Delta\rho = 1390\,\mathrm{kg\,m^{-3}}$, un coefficient de diffusion $D = 5 \times 10^{-11}\,\mathrm{m^2\,s^{-1}}$, une tension de surface bitume/dihydrogène $\gamma = 0{,}03\,\mathrm{N\,m}$ et une pression ambiante $p_\infty = 10^5\,\mathrm{Pa}$.

Dans un premier temps, l'évolution des grandeurs permettant de représenter la population de bulles dans l'échantillon sera analysée et comparée aux tendances attendues suite à l'étude analytique d'une population monodisperse. Une étude de sensibilité pour certains paramètres physiques (viscosité, débit de dose, coefficient de diffusion, hauteur de l'échantillon) sera ensuite menée pour obtenir des tendances d'évolution.

Les deux modélisations de la germination présentées au chapitre 2 seront ensuite analysées et comparées. Cependant, la méthode choisie comme référence pour les simulations est la modélisation par germination seuil. Rappelons que cette méthode consiste à imposer une borne supérieure à la sursaturation. Lorsque cette dernière atteint sa limite, tout le gaz apporté par le terme source est converti en une population de nouvelles bulles insérées.

Il est à noter que, pour toutes les simulations présentées ici, l'instant où la première germination de bulles apparaît est pris comme référence temporelle. En effet, ce qui se passe avant cet instant ne représente par d'intérêt majeur, le terme source ne faisant que faire augmenter la concentration en gaz dissous jusqu'à atteindre la saturation. De plus, nous considérons que la saturation est atteinte au même moment en tout point de l'échantillon. Cette hypothèse est faite suite à l'étude de l'importance de la diffusion sur l'évacuation du gaz menée à la section 2.6 du chapitre 2 et car la radioactivité est considérée homogène en volume. Néanmoins, pour mettre en évidence et quantifier le temps d'induction nécessaire à atteindre la saturation de la matrice, l'échelle en temps de la figure 4.8 est représentée en considérant le début d'irradiation du matériau comme référence temporelle. Cela ne sera plus le cas sur toutes les autres figures où nous nous intéresserons qu'au moment à partir duquel des bulles ont germé.

Pour information, la figure 4.6 nous indique l'évolution du terme source donné par RABBI en fonction du temps. Nous remarquons que, sur une période de 3 ans (qui sera la durée des simulation présentées dans cette partie), la décroissance du terme source peut être considérée linéaire. Il faut regarder son évolution sur plusieurs centaines d'années pour constater une décroissance exponentielle. Cette information nous servira lors des corrélations entre l'évolution du terme source et du gonflement.



(a) Évolution du terme source sur 3 ans (b) Évolution du terme source sur 300 ans

FIGURE 4.6 – Évolution du terme source donné par RABBI en fonction du temps

Avant d'analyser les simulations numériques, il est important de vérifier que le code n'induit pas de biais sur la conservation de masse de gaz. Pour cela, nous avons représenté, sur la figure 4.7, l'évolution en fonction du temps de la quantité de gaz produite par radiolyse et de la quantité de gaz évacué par migration des bulles. Les deux courbes suivent la même évolution, ce qui nous permet de valider la conservation de masse. Le décalage entre les 2 courbes correspond à la quantité de gaz produite mais non évacuée, c'est-à-dire la somme de la quantité de gaz dissoute dans la matrice et de la quantité de gaz présente dans les bulles. Nous notons un retard d'évacuation de gaz au début de la simulation. Il sera montré par la suite que ce retard est bien en adéquation avec l'évolution du gonflement de l'échantillon.

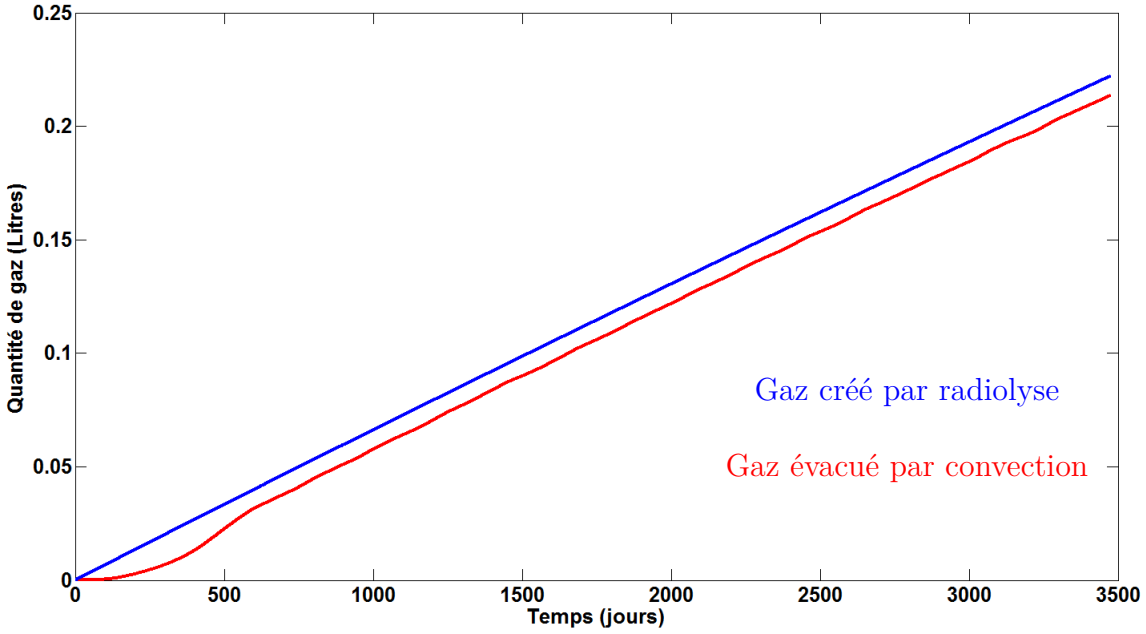


FIGURE 4.7 – Évolution du gaz créé par radiolyse et du gaz évacué par convection au cours du temps

4.2.2 Analyse détaillée d'une simulation d'un échantillon de 8 cm de hauteur

Instants choisis pour l'analyse

L'évolution du gonflement d'un échantillon de 8 cm de hauteur au cours du temps est présentée sur la figure 4.8 (la dose intégrée est également mentionnée à titre indicatif). Nous allons nous intéresser à quatre instants particuliers de cette évolution : lorsque le gonflement est en phase d'augmentation (repéré par le point 1 sur la figure), lorsqu'il est à sa valeur maximale (repère 2), lorsqu'il rediminue (repère 3) et lorsque le gonflement stationnaire du système est atteint (repère 4). L'évolution de certaines variables en fonction de la hauteur dans le récipient pour ces quatre instants va être présentée dans les sections qui suivent.

Les distributions de bulles en volume en bas et en haut du récipient pour les quatre instants indiqués sur la figure 4.8 sont représentées respectivement sur les figures 4.9 et 4.10 dans le but d'aider à la compréhension des sections suivantes. On peut observer au premier coup d'œil (figure 4.10) que les bulles en haut du récipient deviennent plus grosses au cours du temps, ce qui lié à l'établissement du régime stationnaire de gonflement. Par contraste, la figure 4.9 indique qu'en bas du fût, les populations sont plus dispersées, ce qui est la conséquence d'une germination majoritairement en bas du récipient : il y a ainsi une cohabitation entre petites et grosses bulles.

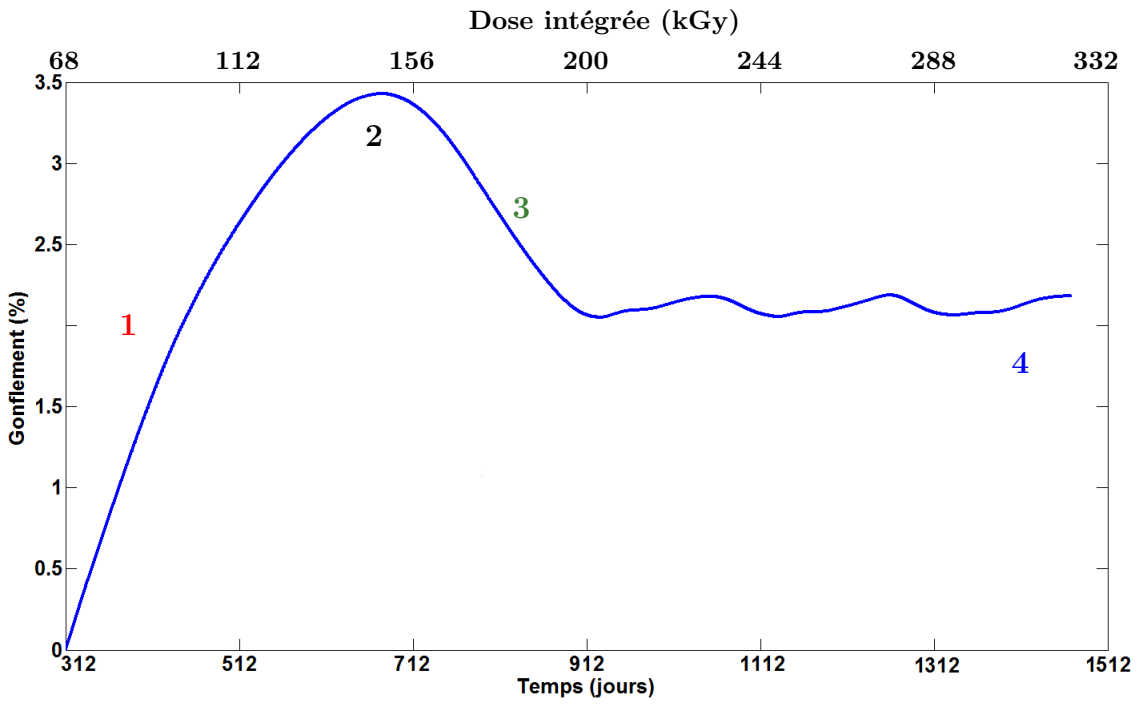


FIGURE 4.8 – Évolution du gonflement macroscopique au cours du temps pour un échantillon de 8 cm de hauteur avec une sursaturation limite 0.01

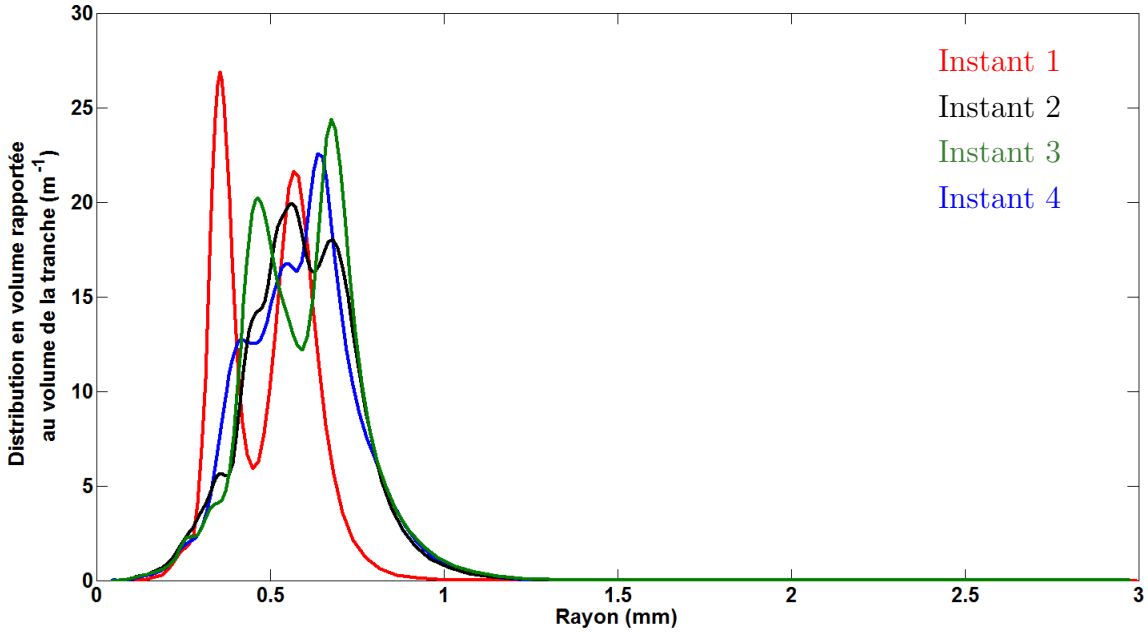


FIGURE 4.9 – Distributions de bulles en volume en bas du récipient pour 4 instants de la simulation

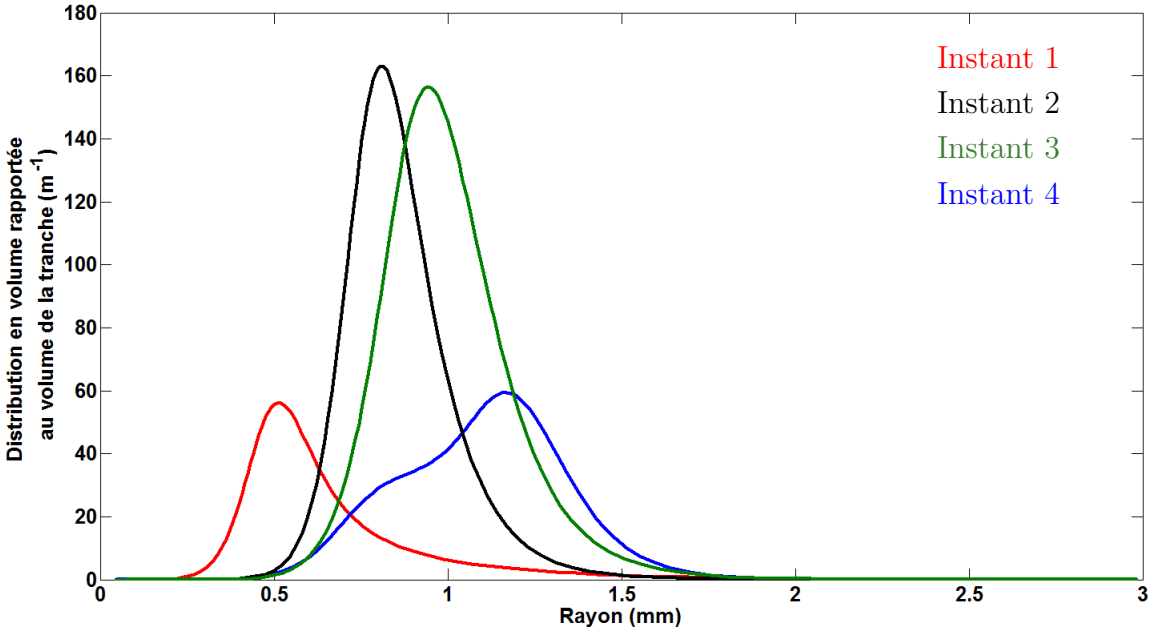


FIGURE 4.10 – Distributions de bulles en volume en haut du récipient pour 4 instants de la simulation

Histoire d'une bulle

Pour mieux comprendre ce qu'il se passe dans le bitume irradié, nous allons décrire l'histoire d'une bulle en considérant une population monodisperse pour simplifier les choses. Si la bulle fait partie des toutes premières bulles créées, elle ne voit autour d'elle que des bulles de la même taille, car la première germination survient simultanément dans tout le récipient. Elle va croître tout en migrant et, lors de sa remontée, elle verra toujours des bulles de la même taille qu'elle au-dessus d'elle. Si cette bulle a été créée au fond du récipient, les bulles qu'elle verra en-dessous d'elle seront de plus petite taille car elles auront été créées plus tard, après que la première génération de bulles ait suffisamment migré. Ainsi, lorsque les bulles apparues au fond du récipient lors de la première génération ont atteint le milieu de la hauteur du récipient, elles sont de la même taille que toutes les bulles qui sont au-dessus, mais, en dessous de celles-ci, il y a un gradient de taille de bulles en fonction de la hauteur (figure 4.11). On imagine ainsi qu'un régime stationnaire va s'établir (gradient permanent de taille de bulles en hauteur) et qu'il sera atteint lorsque les bulles créées au fond du récipient lors de la première germination auront atteint le haut du récipient.

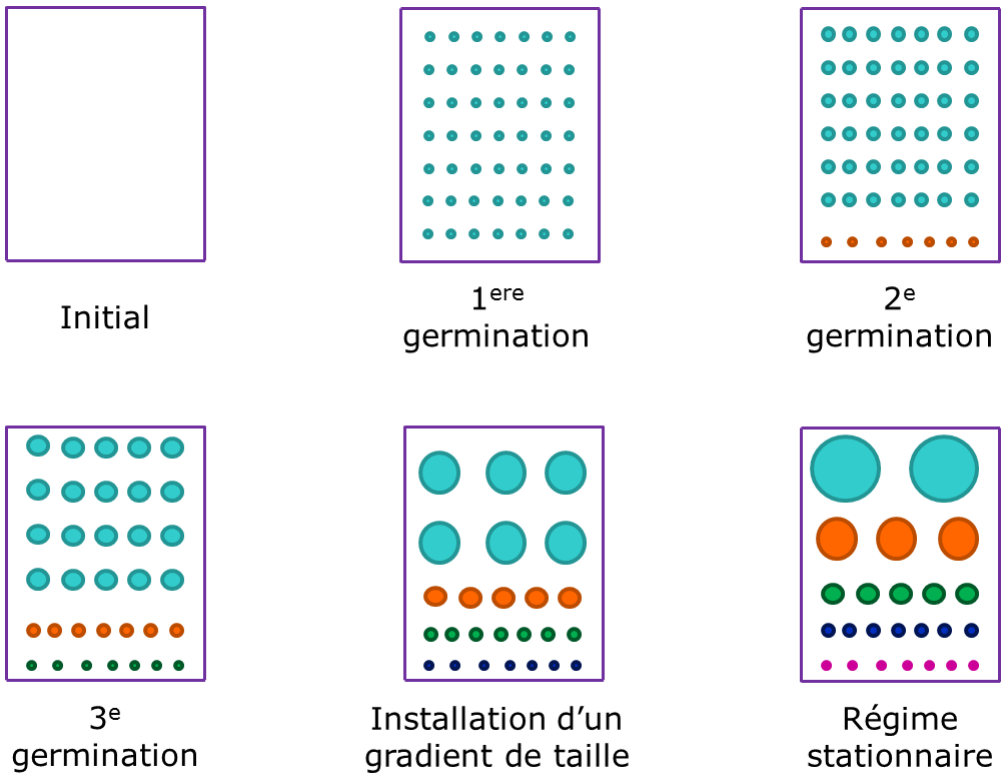


FIGURE 4.11 – Établissement du gradient de taille de bulles selon l'axe vertical lié au régime stationnaire dans le récipient

Évolution de la sursaturation au cours du temps

L'évolution de la sursaturation en fonction du temps dans les 5 premières tranches de l'échantillon ainsi que pour la dernière tranche (pour un maillage en z à 20 nœuds, cf. figure 4.12) nous indique que la germination a lieu sur toute la hauteur du récipient, avec une importance moindre en remontant dans le récipient (fréquence de germination faible). Le fait que la germination ait lieu majoritairement au fond du récipient est assez intuitif car les bulles créées au fond migrent vers les couches supérieures. Cela a pour conséquence de vider les tranches du fond et ainsi il n'y a plus de bulles pour absorber de gaz par croissance. La sursaturation augmente par conséquence, ce qui induit la germination de nouvelles bulles.

On constate également que, pour de nombreuses tranches, la sursaturation se trouve au niveau de la valeur maximale autorisée par la modélisation. Il paraît ainsi évident que le système est sur-contraint. L'influence de la sursaturation seuil sera étudiée dans la section 4.2.4.

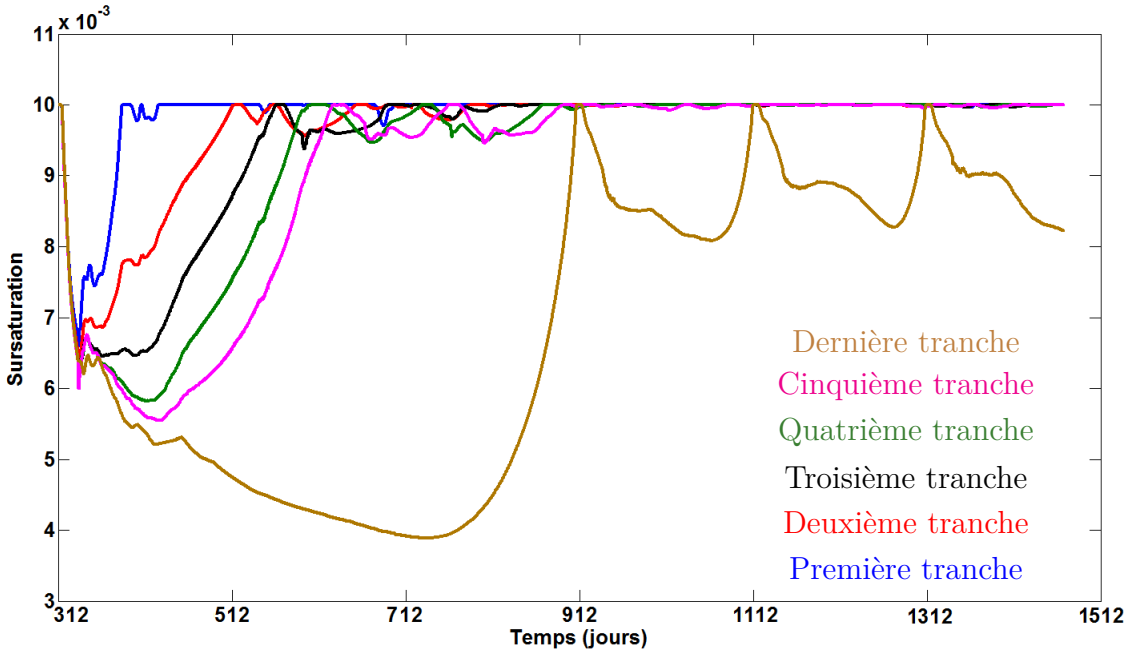


FIGURE 4.12 – Évolution de la sursaturation en fonction du temps dans plusieurs tranches de l'échantillon pour un maillage vertical à 20 nœuds

Indice de polydispersité de la population

Un indice de polydispersité est utilisé ici pour qualifier la population des bulles et vérifier si la comparaison avec le cas théorique d'une population monodisperse peut être envisagée. Cet indice est basé sur des volumes moyens de bulles plutôt que sur des rayons moyens car le raisonnement global de cette étude porte sur des échanges de volume. L'indice de polydispersité est donné par le rapport entre le volume moyen en volume $\bar{V}_v$ (c'est-à-dire pondéré par le volume des bulles) et le volume moyen en nombre $\bar{V}_n$ (c'est-à-dire pondéré

par le nombre de bulles) :

$$\bar{V}_v = \frac{\int(R^3 V dR)}{\int(V dR)} = \frac{\int(R^6 F dR)}{\int(R^3 F dR)} \tag{4.1}$$

$$\bar{V}_n = \frac{\int(R^3 F dR)}{\int(F dR)} \tag{4.2}$$

L'évolution de l'indice de polydispersité en fonction de la hauteur (figure 4.13) nous indique que la population s'approche de plus en plus d'une population monodisperse en remontant dans le récipient, à l'exception de l'instant 1. Au-delà des trois quarts de la hauteur, une comparaison de la population réelle avec le cas théorique d'une population monodisperse semble possible. Néanmoins, on remarque que, ponctuellement pour certaines hauteurs, la population est plus étalée (indice de polydispersité plus élevé). Cela est dû au fait que la germination se fait par à-coups et crée une perturbation qui se propage dans la hauteur du fût au fur à mesure que la vague de bulles créée remonte par migration.

Le fait que l'indice de polydispersité soit plus élevé au fond du matériau est le signe d'une cohabitation entre petites et grosses bulles. Ceci est la conséquence de la germination : des petites bulles sont insérées avant même que les bulles plus anciennes et plus grosses ne soient sorties de la tranche. Cette information nous indique que le système ne devrait pas osciller car, à aucun moment, la tranche est vide de bulles. Il y a un remplacement continu des bulles évacuées par migration.

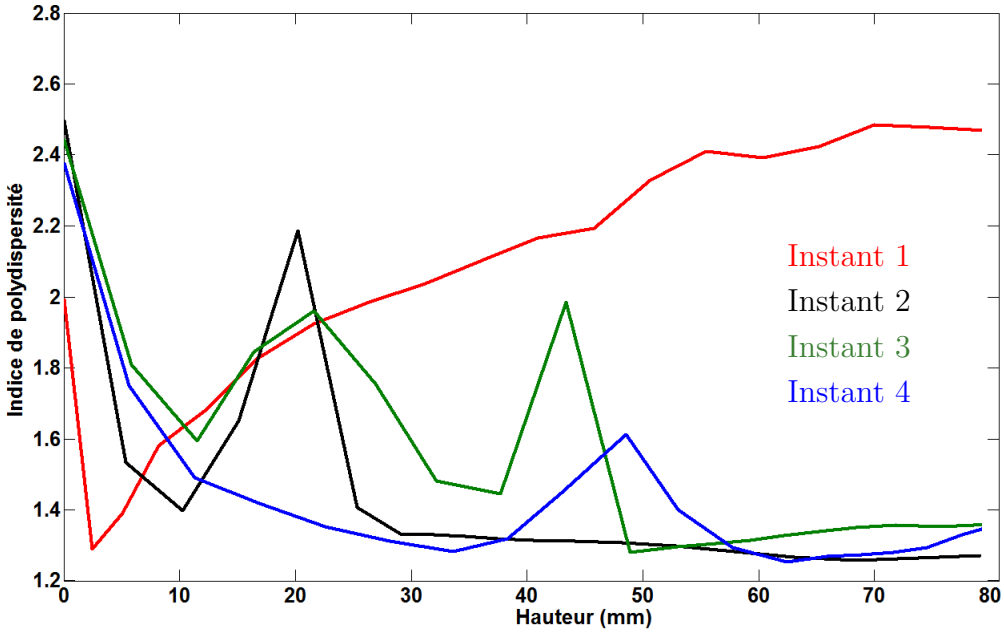


FIGURE 4.13 – Évolution de l'indice de polydispersité de la population en fonction de la hauteur pour 4 instants de la simulation

Évolution du volume des bulles

La figure 4.14 indique que, lorsque le gonflement stationnaire est atteint, un gradient linéaire de taille (en volume) de bulles en hauteur est établi. Les bulles en haut de l'échantillon sont plus grosses, conséquence de la croissance des bulles couplée à leur remontée. Le constat peut également être fait, en observant l'évolution du volume moyen des bulles en fonction de la hauteur pour les instants 1 à 3, que l'établissement du régime stationnaire prend du temps. La quasi-constance du volume moyen en fonction de la hauteur pour l'instant 1 est la conséquence de l'hypothèse que la saturation est atteinte simultanément en tout point du matériau et que la germination des premières bulles s'effectue dans tout le volume. Ainsi, tant que les bulles ne sont pas assez grosses pour avoir une migration conséquente, la population est à peu près la même dans toute la hauteur du récipient.

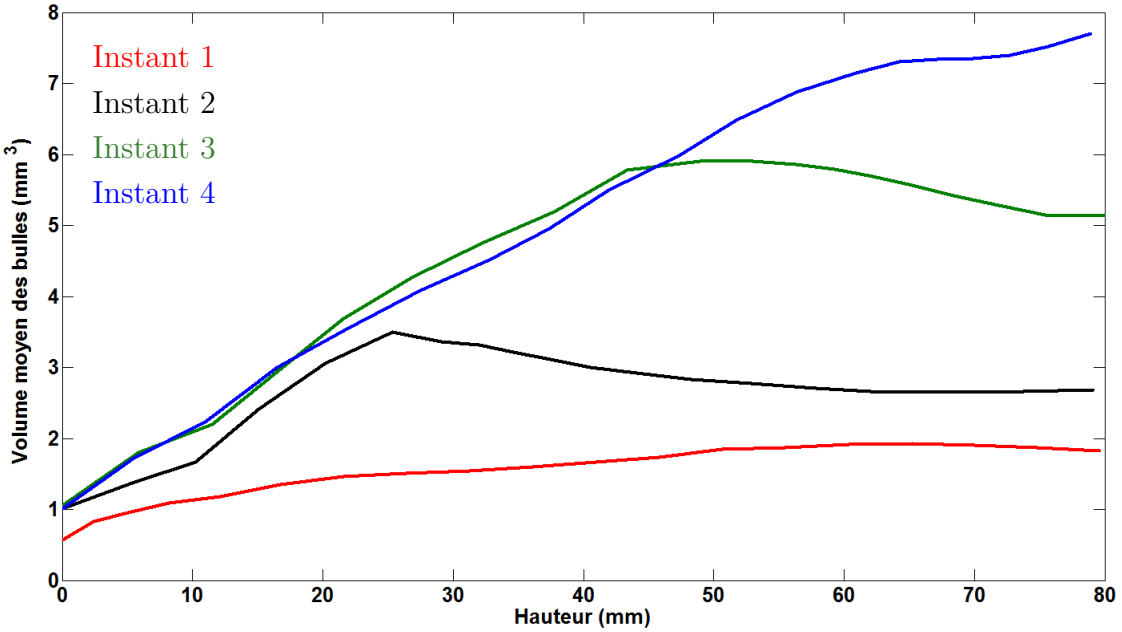


FIGURE 4.14 – Évolution du volume moyen des bulles en fonction de la hauteur pour 4 instants de la simulation

Évolution du nombre de bulles

La figure 4.15 indique qu'en régime stationnaire (instant 4), le nombre de bulles par unité de volume est relativement constant sur toute la hauteur. On constate ici aussi, en observant les courbes des instants 1 à 3, la mise en place du régime stationnaire. Au début de la simulation, les bulles sont nombreuses sur toute la hauteur (elles sont également petites, cf. figure 4.14), puis, au fil du temps, leur nombre diminue. On peut également voir que cette diminution du nombre de bulles se fait d'abord par le bas puis se propage sur toute la hauteur. Cela indique que, au début de la simulation, une surproduction de bulles par germination (par rapport au régime stationnaire) est nécessaire pour absorber le gaz créé par radiolyse. En observant les figures 4.8 et 4.15, on peut estimer que le régime stationnaire est établi lorsque les bulles de la première génération de germination ont migré jusqu'en haut du récipient.

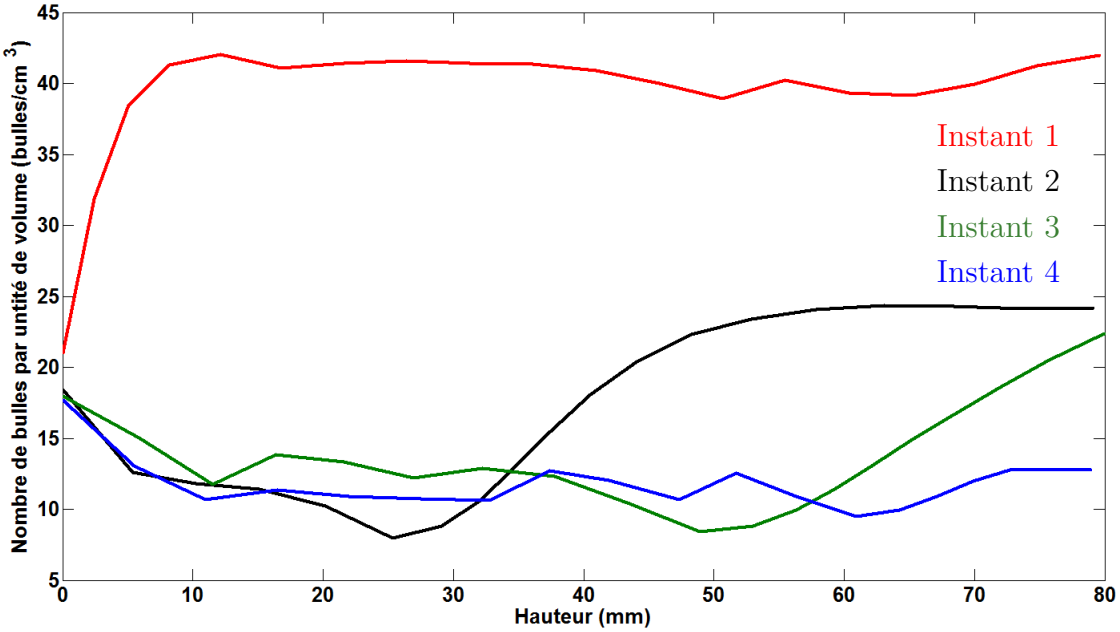


FIGURE 4.15 – Évolution du nombre de bulles par unité de volume en fonction de la hauteur pour 4 instants de la simulation

Évolution de la sursaturation

A l'instant 1, beaucoup de bulles ont été insérées. Cela induit un fort pompage de gaz et par conséquence une sursaturation faible partout dans le récipient. Puis au fil du temps, le rayon moyen des bulles va augmenter jusqu'à l'établissement d'un régime stationnaire. Les bulles étant plus grosses, elles vont alors absorber moins de gaz [1] et la sursaturation va remonter. On constate qu'en régime stationnaire, la sursaturation est à sa valeur maximale dans les trois quarts du récipient, d'où une germination en continu dans toutes ces tranches (figure 4.12).

On constate ici aussi l'avancée au cours du temps d'un front d'établissement du régime stationnaire.

1. l'équation 2.65 du chapitre 2 indique qu'à fraction volumique de bulles donnée, des bulles de petite taille absorbent plus de gaz par croissance que des grosses. Le volume absorbé est en effet inversement proportionnel au carré du rayon des bulles

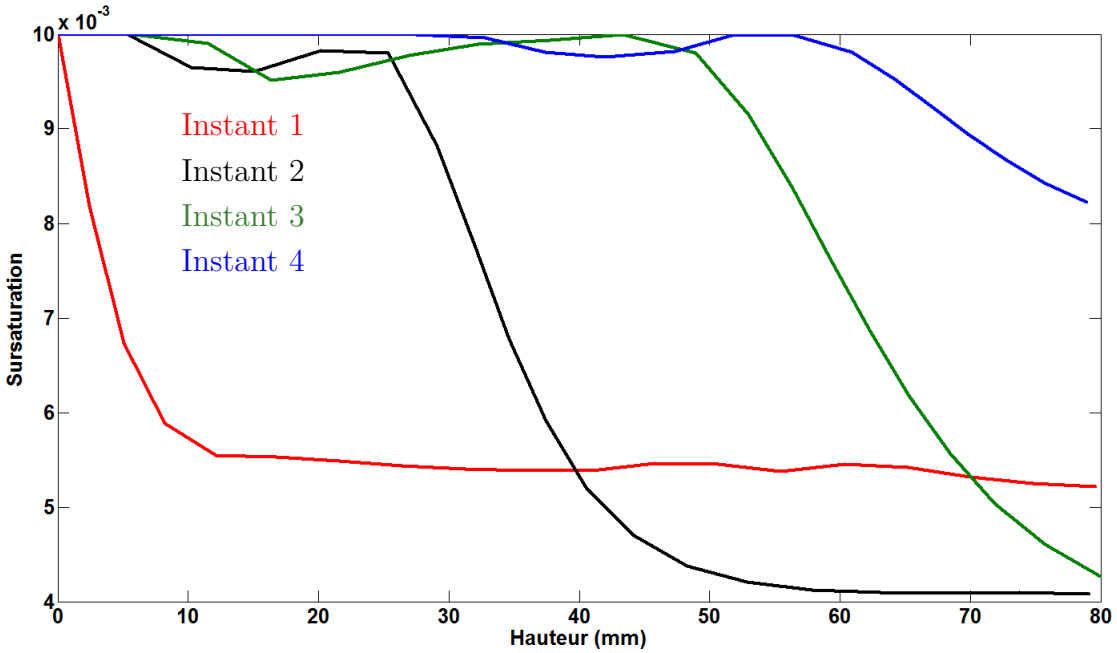


FIGURE 4.16 – Évolution de la sursaturation en fonction de la hauteur pour 4 instants de la simulation

Évolution de la fraction volumique

On constate une augmentation de la fraction volumique en fonction de la hauteur lorsque le régime stationnaire est atteint (courbe bleue de la figure 4.17), ce qui est en accord avec un nombre de bulles constant sur toute la hauteur et une augmenation du volume moyen en remontant dans le récipient (figures 4.14 et 4.15). Cela indique qu'une augmentation de la hauteur de l'échantillon conduira à une augmentation du gonflement.

La courbe noire de la figure 4.17 indique que, au sommet du pic initial de gonflement, seulement le tiers inférieur du récipient a atteint son état stationnaire. Pour les deux tiers supérieurs, on remarque une forte fraction volumique, majoritairement due à un nombre de bulles plus important (figure 4.15). Ces nombreuses bulles correspondent *grosso modo* aux bulles créées dans la moitié inférieure du récipient lors de la première génération de germination. Au moment 2, les bulles créées tout au fond lors de la première germination n'ont parcouru qu'un tiers de la hauteur du récipient. Cet instant marque la fin de l'augmentation de gonflement car à partir de là, les bulles créées en excès au début de la simulation vont engendrer une évacuation de gaz plus importance que le gonflement qu'elles induisent en croissant. Ainsi, elles laissent peu à peu la place aux bulles du régime stationnaire, qui sont moins nombreuses et plus grosses. Ces dernières ont une meilleure efficacité dans l'évacuation du gaz [2], ce qui a pour conséquence d'atteindre un gonflement stationnaire inférieur à celui du moment 2.

2. Il a été montré à la section 1.3.4 du chapitre 1 (équation 1.13) que, pour un volume donné de gaz, l'évacuation engendrée par migration est plus importante si ce volume est contenu dans une seule bulle que s'il est réparti dans deux bulles plus petites

Il est à noter que les tendances relatives des fractions volumiques des différents instants représentées sur la figure 4.17 ne sont pas retrouvées à partir des tendances relatives des figures 4.15 et 4.14 car le nombre total de bulles comprend beaucoup de toutes petites bulles dont le volume est négligeable. Le volume total d'une population ne peut ainsi pas être retrouvé en multipliant directement le volume moyen des bulles par leur nombre total, une intégration sur la gamme de tailles de bulles est nécessaire.

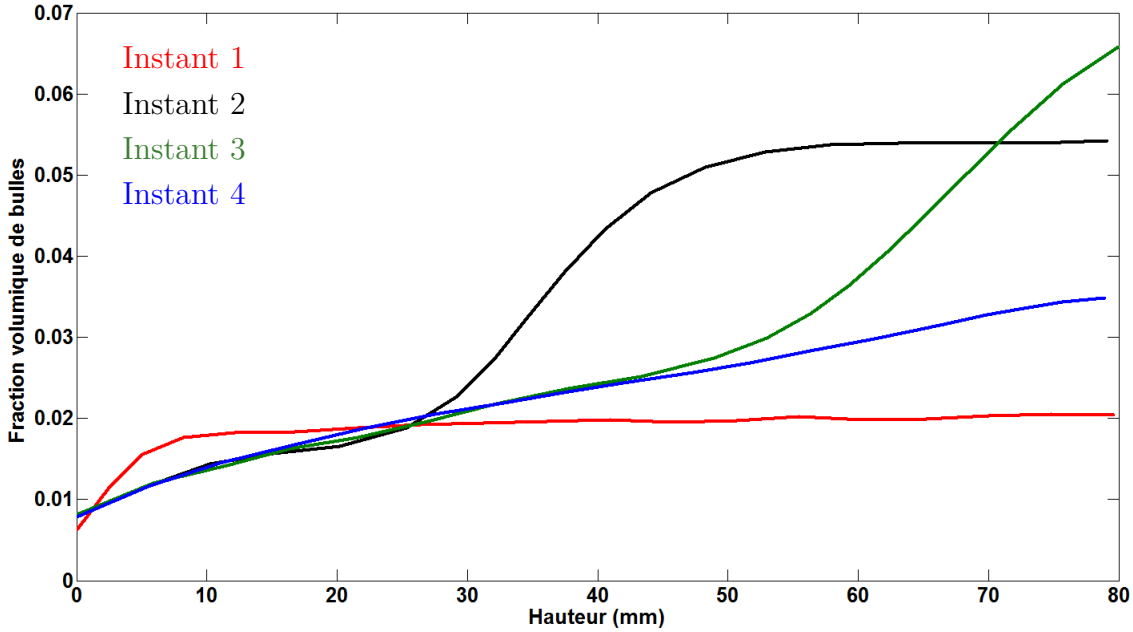


FIGURE 4.17 – Évolution de la fraction volumique des bulles en fonction de la hauteur pour 4 instants de la simulation

Évolution du rapport entre le rayon moyen des bulles et la sursaturation

L'évolution du rapport R/ε pour plusieurs instants du régime stationnaire est présentée sur la figure 4.18. En régime stationnaire, le rapport R/ε augmente en remontant dans le récipient, avec une pente $\partial_z(R/\varepsilon) \simeq 1$. Cela indique que, en reprenant l'étude analytique menée à la section 2.5.3 et notamment l'équation (2.63), le nombre de Peclet est environ égal à 1. La convection n'est donc pas le mécanisme dominant lorsque le régime stationnaire est atteint.

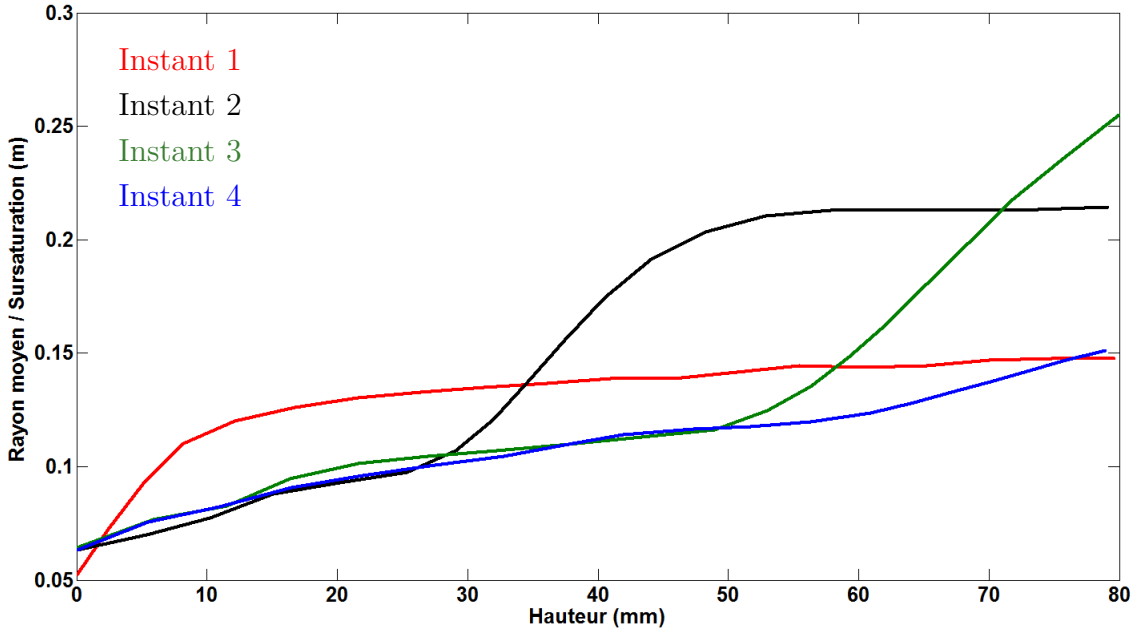


FIGURE 4.18 – Évolution du rapport entre le rayon moyen des bulles et la sursaturation en fonction de la hauteur en gonflement stationnaire

4.2.3 Étude de sensibilité

Cette partie est dédiée à l'étude de l'influence de la hauteur de l'échantillon, de la viscosité du fluide, du coefficient de diffusion et du débit de dose sur le gonflement global du matériau. Dans cet objectif, trois simulations seront présentées pour chaque paramètre, en faisant varier leur valeur nominale d'un facteur 2 en plus et en moins. Une attention particulière sera portée à la valeur du gonflement stationnaire. Notons qu'une discussion sur le pic initial de gonflement sera tenue en fin de chapitre.

Influence de la hauteur du pot

Comme le montre la figure 4.19, une augmentation de la hauteur de l'échantillon entraîne une augmentation du gonflement. Ce résultat était attendu par les résultats de la section 4.2.2. De plus, l'augmentation de la hauteur du récipient entraîne un temps d'établissement du régime stationnaire plus long. Cette observation est en accord avec l'estimation faite à la section 4.2.2 que le régime stationnaire est atteint lorsque les bulles créées au fond lors de la première germination ont atteint le haut du récipient. En effet, plus la hauteur sera élevée, plus le temps pour que les bulles atteignent le haut du récipient sera élevé. Cette explication est également valable pour l'augmentation du gonflement stationnaire avec la hauteur.

Influence du coefficient de diffusion

Une augmentation du coefficient de diffusion mène à une diminution du gonflement (figure 4.20). Cela est dû à une hausse de la vitesse de croissance des bulles, donc également de

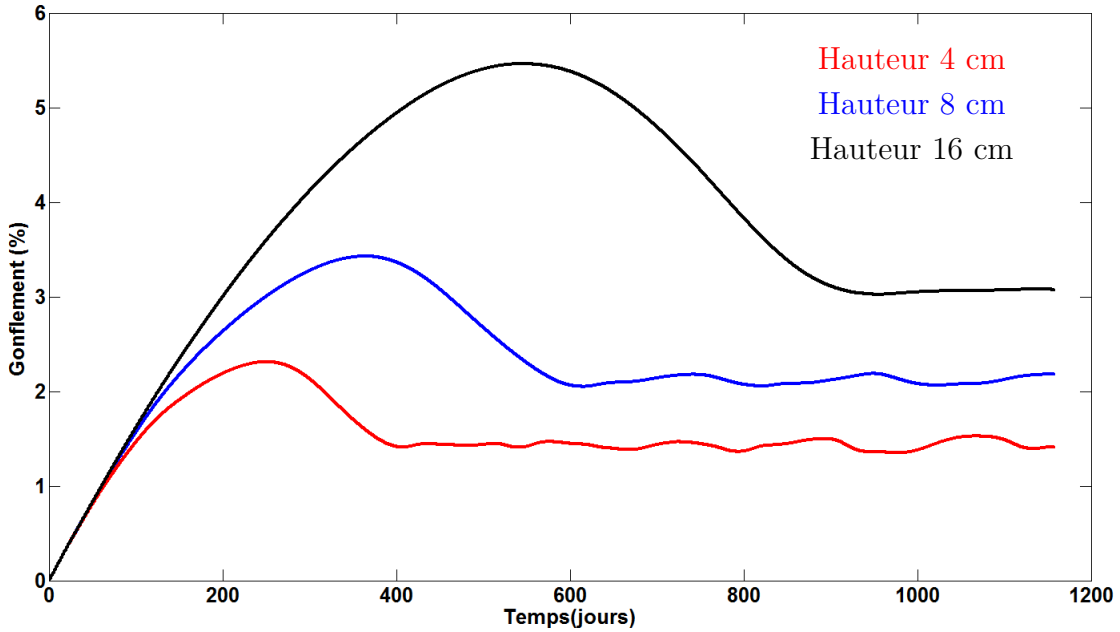


FIGURE 4.19 – Évolution du gonflement macroscopique en fonction du temps pour plusieurs hauteurs de fût

leur taille, et, par conséquence, une accélération du débit d'évacuation par convection.

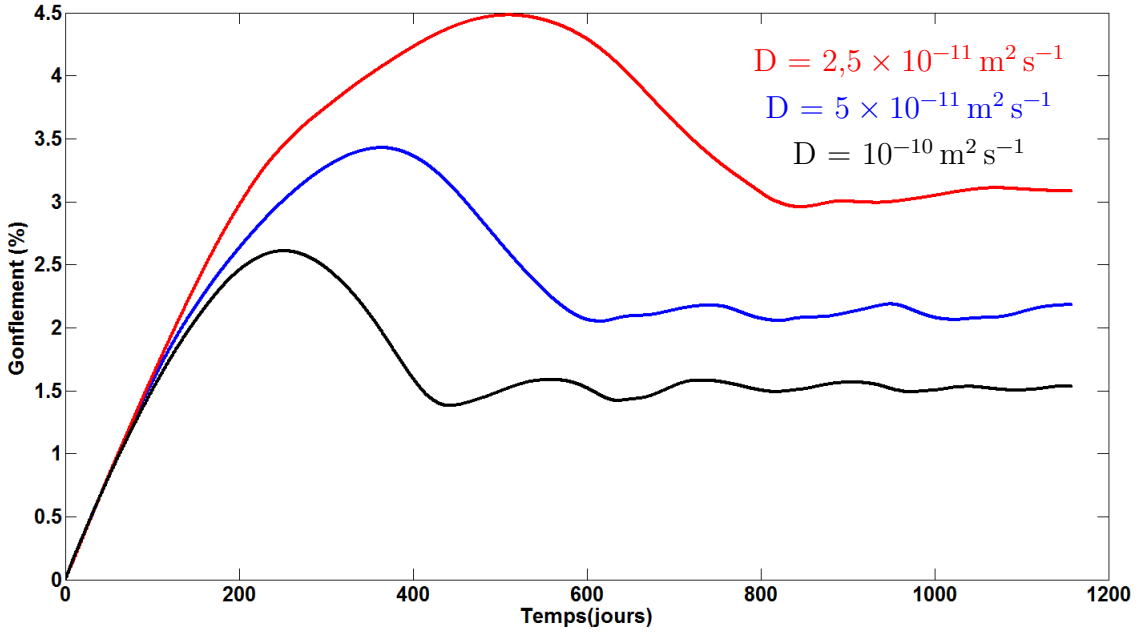


FIGURE 4.20 – Évolution du gonflement macroscopique en fonction du temps pour plusieurs coefficients de diffusion

Influence de la viscosité

L'influence de la viscosité du fluide sur la valeur du gonflement est représentée sur la figure 4.21. Plus sa valeur est élevée et plus le gonflement le sera aussi. Ce résultat est intuitif car une augmentation de la viscosité entraîne un ralentissement de la remontée des bulles, sans avoir de conséquence sur leur croissance (car la croissance est supposée purement diffusive comme montré à la section 2.2.4 du chapitre 2). On imagine alors aisément que, pour assurer un convoyage aussi efficace du gaz en régime stationnaire dans un fluide de viscosité plus élevée, les bulles devront être plus grosses et donc induiront un gonflement plus important. Le temps d'établissement du régime stationnaire est également allongé par une augmentation de la viscosité car les bulles créées au fond du récipient lors de la première germination mettent plus de temps pour parcourir la hauteur du récipient.

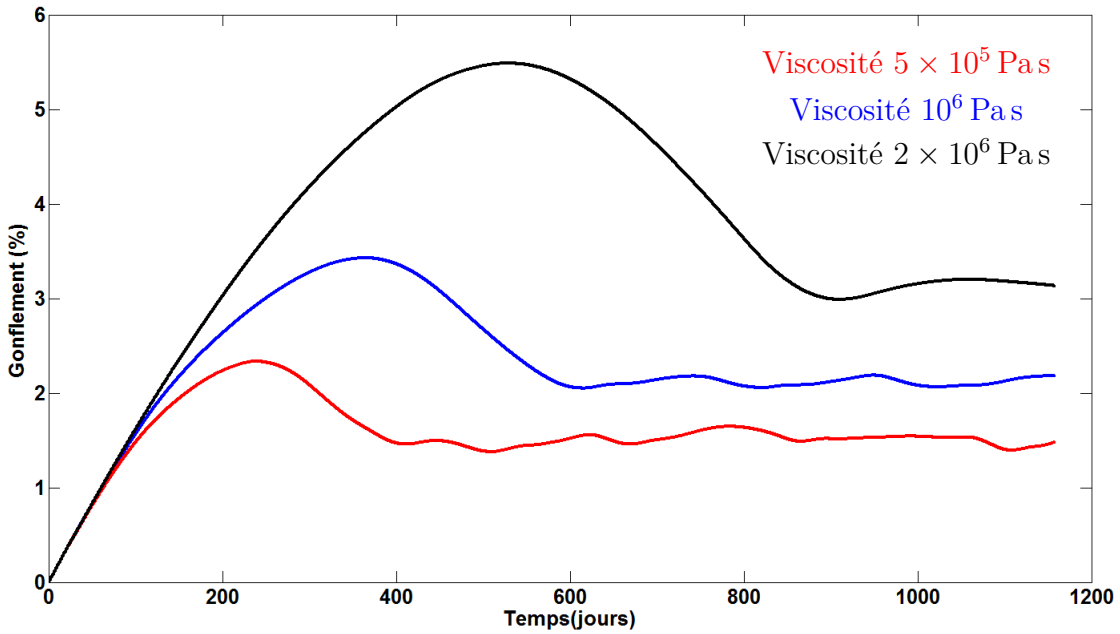


FIGURE 4.21 – Évolution du gonflement macroscopique en fonction du temps pour plusieurs viscosités de l'enrobé

Influence du terme source

Comme il a été montré dans la section 4.1.2, une augmentation du débit de dose n'a qu'un faible impact sur la vitesse de croissance des bulles, mais elle induit en revanche un nombre beaucoup plus élevé de bulles. Cela explique que, comme le montre la figure 4.22, le temps d'établissement du régime stationnaire soit le même quel que soit la valeur du débit de dose : le rayon moyen des bulles est sensiblement le même donc leur temps de remontée aussi. En suivant le même raisonnement, un nombre plus élevé de bulles, avec des tailles équivalentes, induit un gonflement plus important. L'augmentation du terme source induit donc logiquement une augmentation du gonflement.

On constate également que plus le terme source est élevé, plus la pente du pic initial de gonflement est forte. Ce résultat est intuitif car, aux premiers instants de la simulation, l'évacuation de gaz par migration est négligeable car les bulles sont encore petites. Par conservation de masse, la dérivée du gonflement par rapport au temps est donc directement égale au terme source volumique T_{sv} tant que l'évacuation est négligeable. Passé un certain temps (et donc une certaine taille de bulles), la migration engendre une évacuation conséquente de gaz qui vient équilibrer le terme source et donc stopper l'augmentation de gonflement.

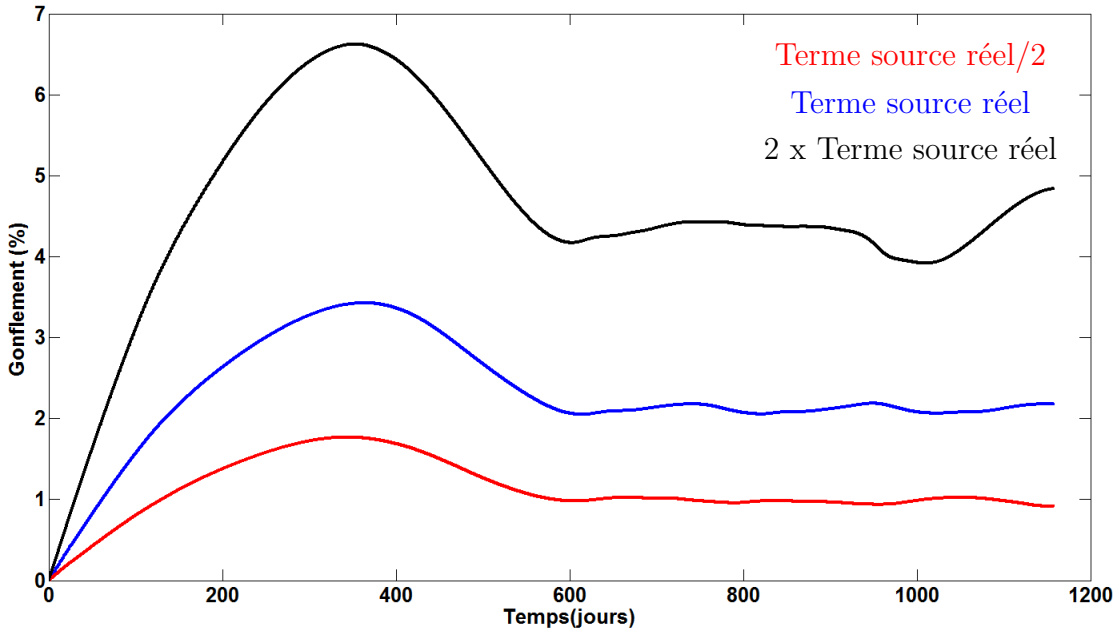


FIGURE 4.22 – Évolution du gonflement macroscopique en fonction du temps pour plusieurs termes source

4.2.4 Discussion sur la modélisation de la germination

L'attention va être portée ici sur l'influence du choix de modélisation de la germination. Nous avons d'une part la germination seuil qui consiste à imposer une limite à la sursaturation (et convertir le gaz qui aurait dû être ajouté à celle-ci en une population de nouvelles bulles insérées) et d'autre part la germination continue qui consiste à faire germer de nouvelles bulles dès lors que la sursaturation augmente.

Germination seuil

Pour la germination seuil, un paramètre peut être étudié : la valeur seuil de la sursaturation admise, qui est inversement proportionnelle au rayon des bulles insérées. L'influence de ce paramètre sur l'évolution du gonflement est présentée sur la figure 4.23. On peut

constater qu'une augmentation de la sursaturation limite induit une diminution du gonflement. Cela signifie que lorsque les bulles insérées sont plus grosses, le gonflement est plus important [3]. Ce résultat n'est pas intuitif, car plus les bulles sont grosses, plus leur vitesse de migration est élevée, ce qui semblerait plutôt induire une évacuation de gaz plus élevée et un gonflement moins important.

Les figures 4.24 et 4.25 nous permettent de comprendre cette tendance. On constate que, lorsque les bulles insérées sont plus grosses (figure 4.25), on assiste à de la germination sans arrêt pour de nombreuses tranches du récipient [4] à partir d'un certain temps. Dans le cas de bulles insérées plus petites (figure 4.24), la germination est beaucoup plus rare. Cela indique que les grosses bulles n'absorbent pas assez de gaz par croissance pour équilibrer l'apport de gaz par terme source. Le système a sans cesse besoin de convertir l'excès de gaz de radiolyse via la germination tandis que, dans le cas de petites bulles insérées, leur absorption de gaz par croissance est suffisante pour contrebalancer l'apport de gaz par radiolyse et le système n'a besoin d'en créer que ponctuellement. L'équation 2.65 du chapitre 2, indiquant que, à fraction volumique égale, le volume de gaz absorbé par croissance des bulles est inversement proportionnel à leur rayon et proportionnel à la sursaturation, confirme ce qui est observé ici.

Ainsi, lorsque les bulles insérées sont trop grosses, elles n'absorbent pas assez de gaz par croissance : une grande partie du gaz créé par terme source est équilibré par la germination de nouvelles bulles et non par la croissance des bulles déjà présentes. D'un point de vue global pour le système, ce mode de fonctionnement est moins efficace pour évacuer le gaz de radiolyse hors du récipient que lorsque les bulles insérées sont petites. Cela explique qu'il faille avoir une fraction volumique de bulles plus importante pour assurer une évacuation équivalente et atteindre un état stationnaire.

On remarque, en observant les figures 4.23 et 4.24, que la période des oscillations observées sur le gonflement pour la sursaturation limite 0,02 correspond à la période de germination dans la dernière tranche du récipient. Les conditions de germination peuvent don c être à l'origine d'oscillations du système.

3. Rappelons que lors de la germination, un volume imposé de bulles est introduit. Si les bulles sont plus grosses, leur nombre est plus faible, donc le fait d'insérer des grosses bulles n'induit pas un gonflement plus important au moment de leur insertion

4. La germination survient aux instants où la sursaturation arrive à son maximum sur les courbes

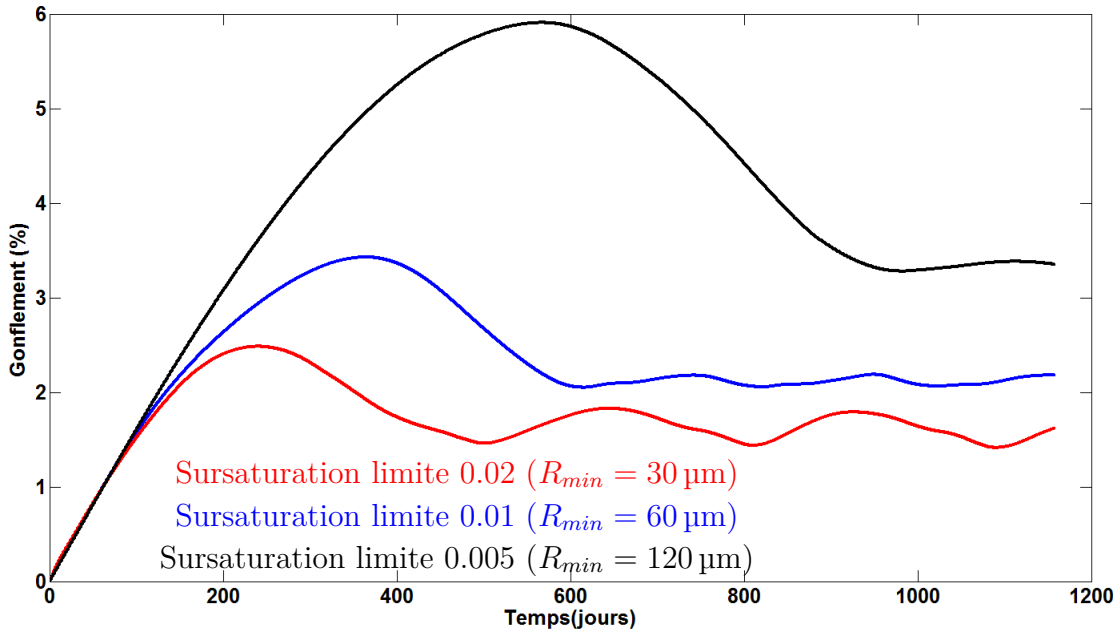


FIGURE 4.23 – Évolution du gonflement en fonction du temps pour différentes sursaturations limites dans le cas de germination seuil

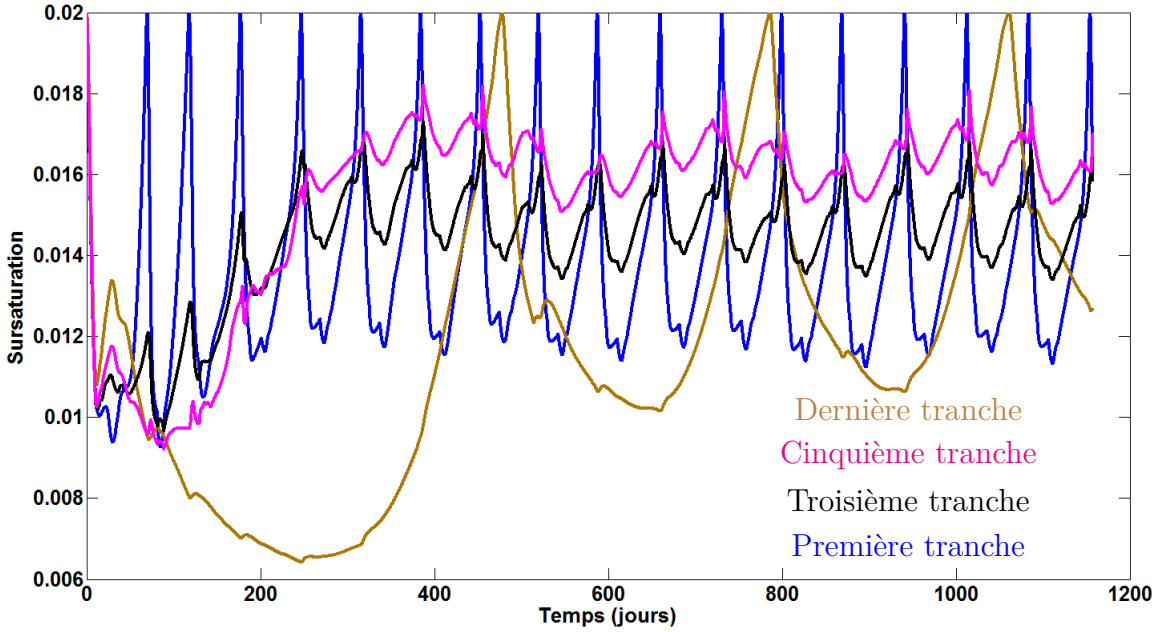


FIGURE 4.24 – Évolution de la sursaturation en fonction du temps dans plusieurs tranches de l'échantillon pour un maillage vertical à 20 nœuds et une sursaturation limite 0,02

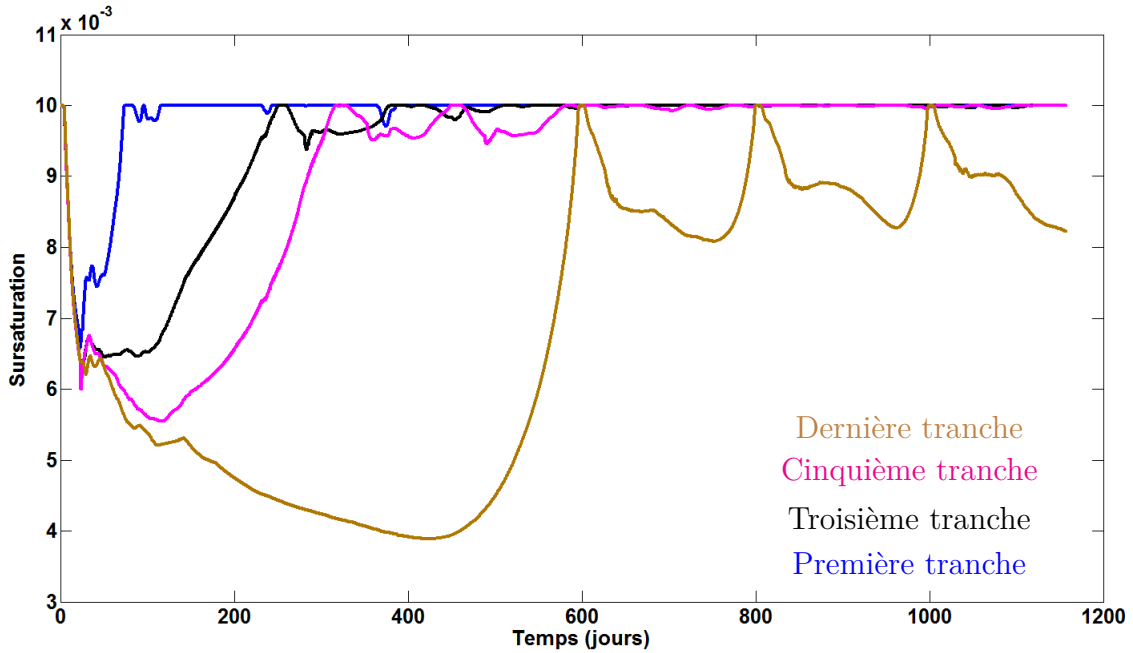


FIGURE 4.25 – Évolution de la sursaturation en fonction du temps dans plusieurs tranches de l'échantillon pour un maillage vertical à 20 nœuds et une sursaturation limite 0,01

Germination continue

Dans le cas de la germination continue, le paramètre à étudier est appelé paramètre de germination a. Il correspond à la fraction de l'augmentation de sursaturation qui va être prélevée à la matrice pour être convertie en bulles insérées. Ainsi, plus ce paramètre est élevé et plus l'augmentation de sursaturation est freinée. Comme on peut le voir sur la figure 4.26, le système tend vers un état d'équilibre asymptotique qui dépend du paramètre a.

Plus le paramètre a est important, plus le nombre de bulles insérées est élevé et plus la sursaturation est faible. Les bulles vont croître moins vite, car la vitesse de croissance est proportionnelle à la sursaturation, et être plus petites. Au final, il y a plus de bulles de tailles plus petites. Or, il a été montré à la section 1.3.4 du chapitre 1 (équation (1.13)) que, pour une fraction volumique de bulles donnée, l'évacuation de gaz est moins importante lorsque les bulles sont plus petites et nombreuses. Ainsi, pour que le système atteigne un état stationnaire, donc que la quantité de gaz évacuée par migration soit égale à l'apport par radiolyse, il faudra une fraction volumique de bulles plus importante si les bulles sont plus petites, ce qui induit un gonflement plus important.

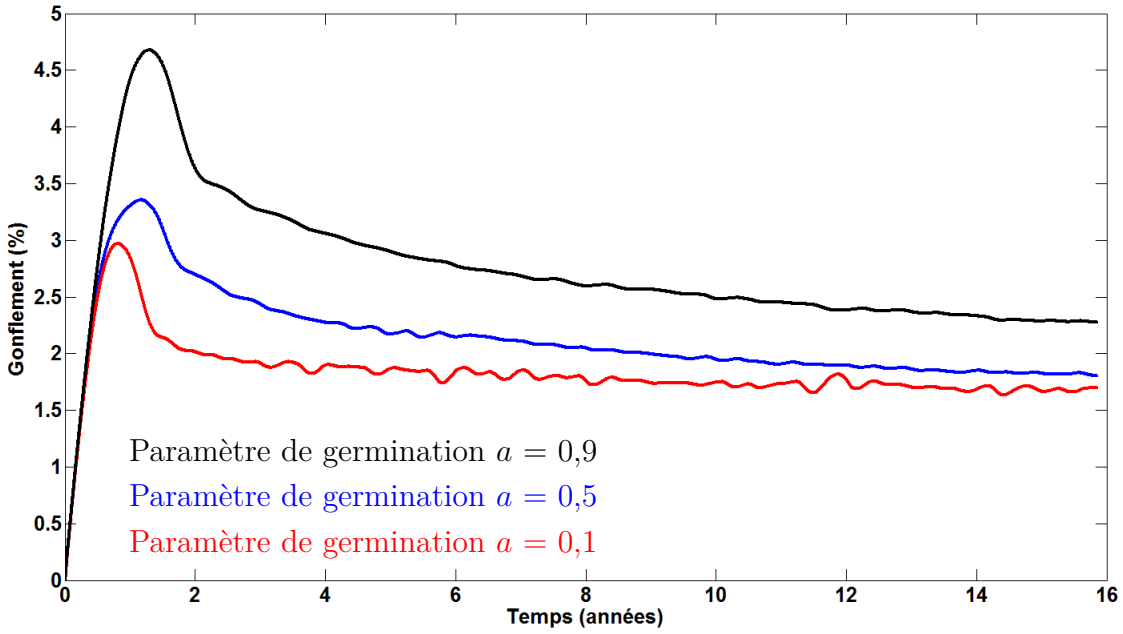


FIGURE 4.26 – Évolution du gonflement macroscopique en fonction du temps pour plusieurs paramètres de germination dans le cas d'une germination continue

En germination continue, on note une décroissance assez lente du gonflement après le pic initial. On pourrait penser que c'est la conséquence de la décroissance exponentielle du terme source, mais tel n'est pas le cas, comme le montre la figure 4.6 où nous constatons que la décroissance du terme sur une si courte durée peut être considérée linéaire.

Comparaison des deux modélisations de la germination

Les deux modélisations induisent des résultats légèrement différents. La germination continue semble donner une évolution plus douce et lissée du gonflement tandis que des oscillations peuvent être constatées dans le cas de la germination seuil (figures 4.27 et 4.28). Les populations en haut du récipient (figure 4.29) pour les deux types de germination sont assez proches. Dans les deux cas, un épaulement est constaté au faibles rayons, ce qui est dû au fait que la germination génère des petites bulles. Celles-ci ont une vitesse de croissance plus importante que les grosses et les rattrapent donc progressivement.

On observe sur la figure 4.28 que lorsque l'état stationnaire est atteint, le débit de gaz sortant est bien le même pour les deux types de germination. Il est égal à la quantité de gaz produite par radiolyse par unité de temps dans la totalité du récipient de hauteur H et de diamètre Q_r : $\pi D_r^2 H T_{sv}/4$.

Les résultats obtenus pour les deux approches de la germination montrent que le gonflement est très sensible aux paramètres choisis, et ce, quelle que soit la modélisation choisie. Des investigations expérimentales sont donc nécessaires pour appréhender ce mécanisme dans le cas d'enrobés bitumineux et obtenir des résultats de gonflement pertinents.

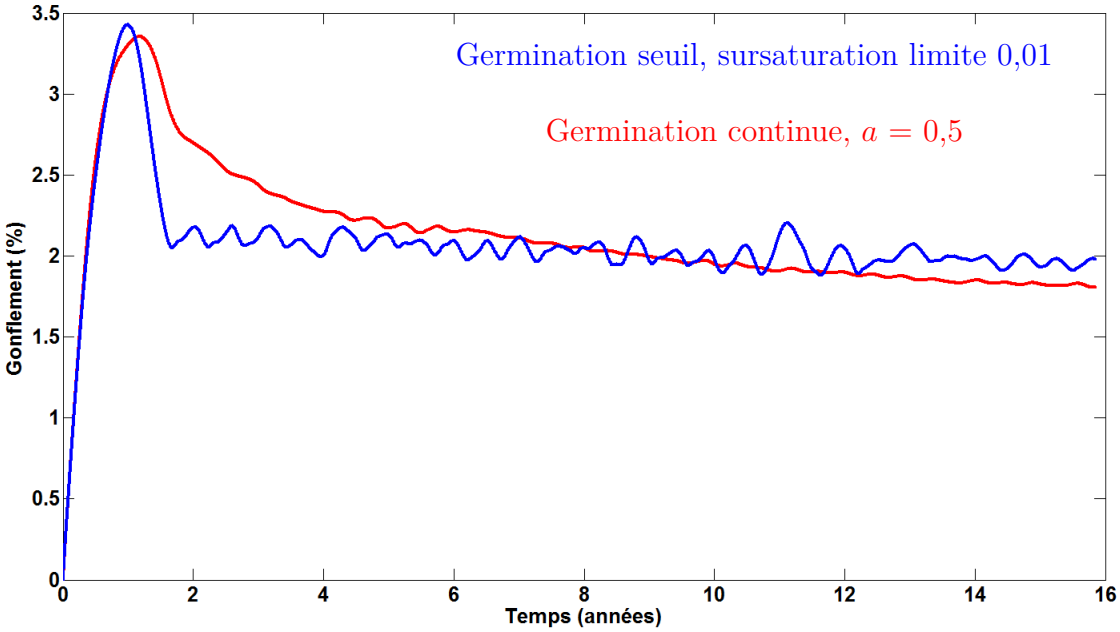


FIGURE 4.27 – Évolution du gonflement macroscopique en fonction du temps pour les deux modélisations de la germination

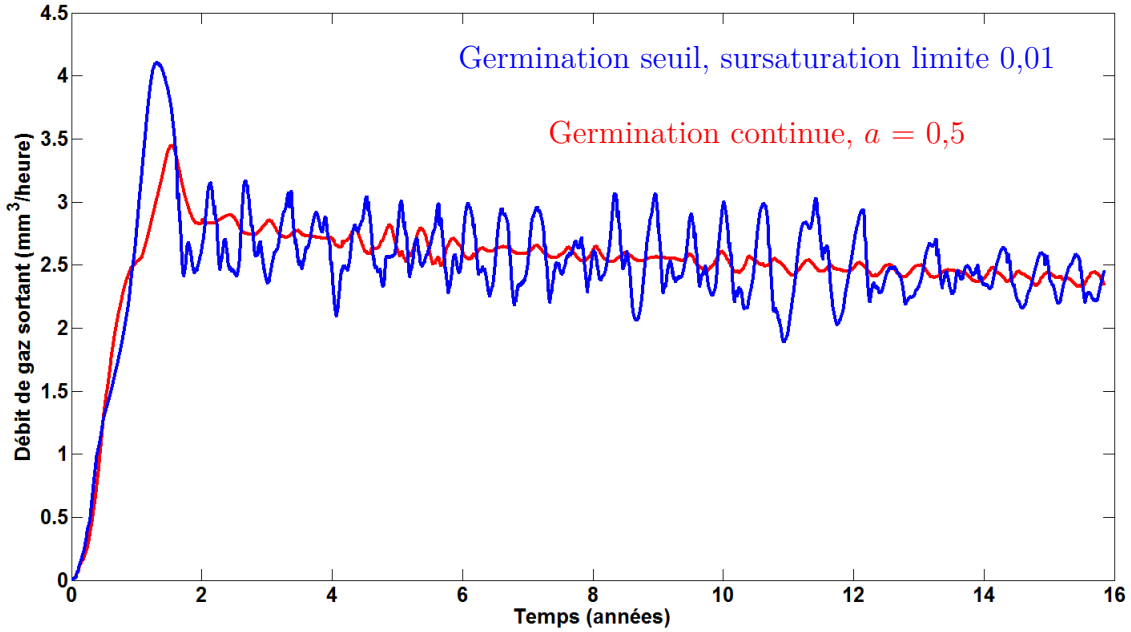


FIGURE 4.28 – Évolution du débit de gaz sortant en fonction du temps pour les deux modélisations de la germination

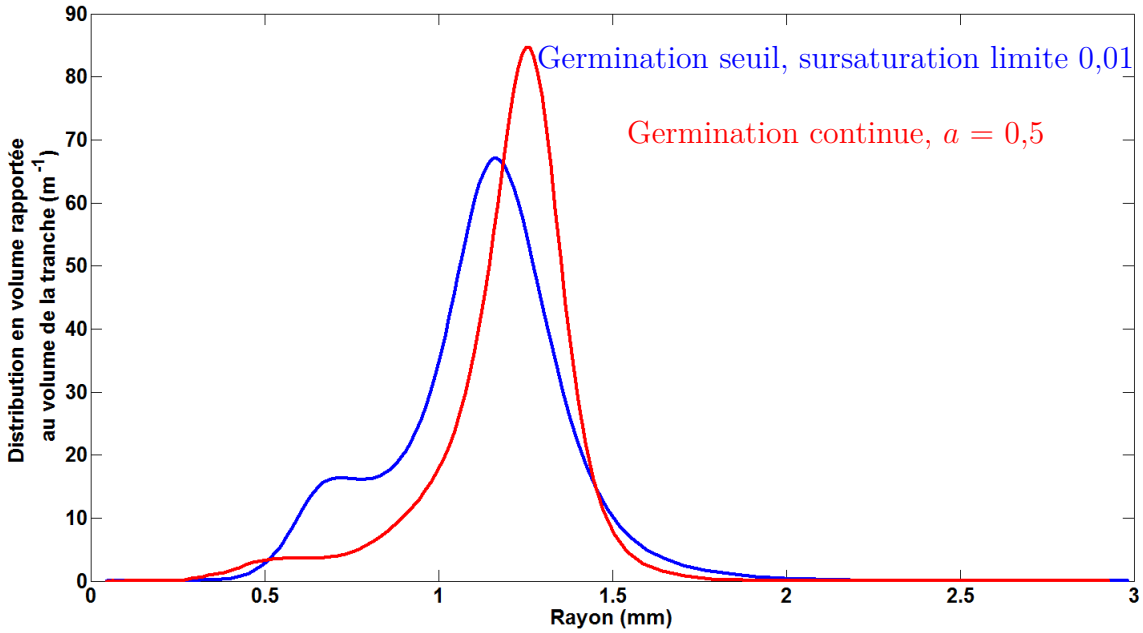


FIGURE 4.29 – Distributions en volume des populations en haut du récipient en régime stationnaire (au bout de 16 ans) pour les deux modélisations de la germination

4.2.5 Discussion sur le pic initial de gonflement et sur la physique

La présence d'un pic de gonflement initial est constatée pour toutes les simulations numériques de notre modèle. La question se pose alors de savoir si ce pic est un biais induit par

les hypothèses du modèle présenté dans ce travail, ou bien s'il rend compte du comportement réel d'un enrobé irradié. Un des obstacles pour pouvoir répondre à cette question est le manque de connaissance du gonflement d'enrobé dans des conditions réelles.

Des essais ont été menés au CEA en irradiateur industriel pour étudier l'influence du débit de dose, mais pas dans le cas de débits de dose proches de ceux d'un colis réel. Cela est dû d'une part à la complexité technique pour suivre le gonflement d'un fût réel et aussi au fait que cette évolution se fasse sur des périodes de plusieurs dizaines d'années, rendant toute étude inexploitable à court ou moyen terme.

Néanmoins, dans le cas d'échantillons irradiés industriellement à forts débits de dose (de 100 Gy/h jusqu'à 4500 Gy/h), la présence de pic initial de gonflement n'a pas été constatée. Certaines des hypothèses sur lesquelles repose le modèle développé ici sont donc peut-être à revoir. Mais il se peut aussi que cela soit dû au fait que la coalescence des bulles n'a pas été prise en compte dans ce travail.

Il a été montré dans le chapitre 1 que la coalescence pourrait jouer un rôle déterminant sur l'évacuation de gaz par convection. En effet, si deux bulles de taille identique coalescent, l'évacuation de gaz par unité de temps est alors multipliée par 1,59. Cette amplification de la migration pourrait alors accélérer l'établissement du régime stationnaire et ainsi supprimer (ou tout au moins diminuer) le pic initial de gonflement. Pour ces raisons, une étude sera menée consécutivement à cette thèse pour intégrer la coalescence au modèle présenté ici.

L'hypothèse que la sursaturation reste à de faibles valeurs pourrait également être la cause du pic initial de gonflement. Cette hypothèse, conjuguée à un terme source présent dans tout le volume de matériau, implique que lors de la première germination, des bulles apparaissent dans tout le volume de l'échantillon. Cela engendre une évolution de la fraction volumique égale en tout point du matériau dans les premiers temps, c'est-à-dire tant que la migration reste minoritaire. Nous avons constaté dans la section 4.2.2 que, par la suite, le régime mettait un certain temps pour s'établir et que le pic de gonflement survenait pendant ce temps d'établissement.

Si, au contraire, nous faisions l'hypothèse que la sursaturation peut atteindre de très fortes valeurs et que toutes les bulles germent uniquement au fond du fût, et ce dès la première germination, l'évolution de la fraction volumique des bulles serait différente. On peut supposer que le gradient de taille de bulles en hauteur s'établirait à mesure que les premières bulles créées remontent. Il pourrait ainsi ne pas y avoir de pic de gonflement initial et l'on pourrait atteindre directement l'état stationnaire. Ces raisons, conjuguées au fait que le gonflement est très sensible à la germination, mettent en évidence la nécessité d'une étude approfondie des mécanismes de germination dans les enrobés bitumineux.

4.3 Comparaison des simulations numériques avec les résultats expérimentaux

Cette section traite de la comparaison des résultats expérimentaux obtenus par irradiation d'échantillons dans un irradiateur industriel pour de forts débits de dose et présente une simulation d'un fût réel.

4.3.1 Échantillons irradiés industriellement à forts débits de dose

Les figures 4.30 à 4.32 présentent la modélisation de l'évolution du gonflement d'un échantillon de 8 cm de hauteur pour des valeurs de débits de dose respectives de 100 Gy/h, 400 Gy/h et 5000 Gy/h, en fonction de la dose reçue.

Pour le premier cas (figure 4.30), on constate un pic initial de gonflement comme lors des simulations étudiées précédemment. En revanche, après ce pic, le gonflement n'atteint plus un état stationnaire mais il augmente fortement avec la dose reçue. Cela est la conséquence de l'augmentation de la viscosité de l'enrobé suite aux rayonnements qu'il a absorbés. En effet, l'évolution de la viscosité en fonction de la dose reçue suit une loi puissance [5]. A forte dose, la viscosité augmente considérablement, ce qui provoque un ralentissement de la migration des bulles et par conséquent une augmentation du gonflement. Cette tendance est en accord avec les résultats de la section 4.2.3, où il a été montré que le gonflement est très sensible à la viscosité du fluide. Il est à noter que cette augmentation du gonflement n'était pas observée pour le cas d'un débit de dose de 4,5 Gy/h car la dose intégrée totale durant les périodes étudiées ne dépassait pas 1 MGy.

Des échantillons d'enrobé ont été soumis à des rayonnements externes par le CEA et un suivi du gonflement en fonction de la dose reçue a été réalisé (données internes CEA confidentielles). Les résultats expérimentaux montrent un gonflement plus important que celui obtenu avec les simulations numériques. Cette différence peut être imputable à la loi de vieillissement des enrobés considérée dans ce travail. En effet, Mouazen [5] a établi une loi d'évolution de la viscosité en fonction de la dose intégrée pour un débit de dose de 4500 Gy/h. Or, des études en cours au CEA tendent à montrer que la loi de vieillissement est dépendante du débit de dose : plus le débit de dose est faible, plus l'évolution de la viscosité est importante, à dose intégrée équivalente. La viscosité réelle d'un échantillon soumis à un débit de dose de 100 Gy/h serait plus élevée que celle prise en compte dans les simulations numériques, ce qui pourrait expliquer que le gonflement constaté expérimentalement à un débit de dose de 100 Gy/h soit plus important que celui obtenu numériquement. L'établissement d'une loi de vieillissement pour des faibles débits de dose permettra d'améliorer la précision des résultats numériques.

Une deuxième explication possible de cette différence est que le bitume a jusqu'à présent été considéré comme un fluide newtonien. La prise en compte du seuil d'écoulement peut également jouer sur le gonflement. On imagine que le seuil aura tendance à faire augmenter le gonflement car il ralentit la migration des bulles. Pour cette raison, le chapitre suivant

est consacré au cas d'un fluide à seuil.

Les figures 4.31 et 4.32 montrent que, pour de très forts débits de dose, le gonflement augmente sans interruption et il atteint des valeurs irréalistes (expérimentalement, le gonflement ne dépasse pas 100 %, même dans le cas d'un débit de dose de 5000 Gy/h). Le modèle présenté dans ce travail repose sur une hypothèse de champ moyen en concentration et l'hypothèse que les bulles ne sont pas influencées les unes par les autres. Or, cette dernière est mise à mal dans le cas de fractions volumiques de plus de 10% comme c'est le cas pour des enrobés bitumineux fortement irradiés. Il faudrait donc prendre en compte la distance inter-bulles et l'influence de la fraction volumique sur l'évolution d'une population pour améliorer le modèle élaboré ici. De plus, les observations des images de microtomographie présentées au chapitre 1 montrent clairement que, à très fort débit de dose, les bulles ne sont plus sphériques. On imagine également que lorsque la fraction volumique de bulles est trop élevée, les parois de fluide séparant les bulles sont minces et peuvent facilement se rompre : le matériau s'apparente alors plutôt à une émulsion. Pour ces raisons, le cas des forts débits de dose (non représentatif de la réalité) est donc hors de la physique décrite par notre modèle.

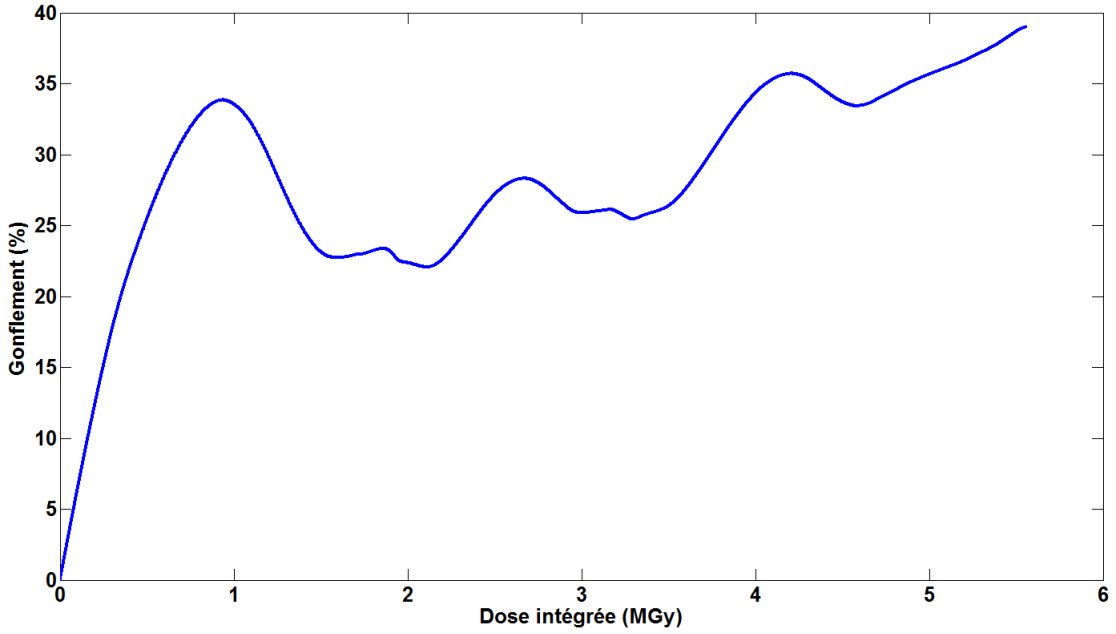


FIGURE 4.30 – Modélisation de l'évolution du gonflement en fonction de la dose intégrée pour un débit de dose de 100 Gy/h

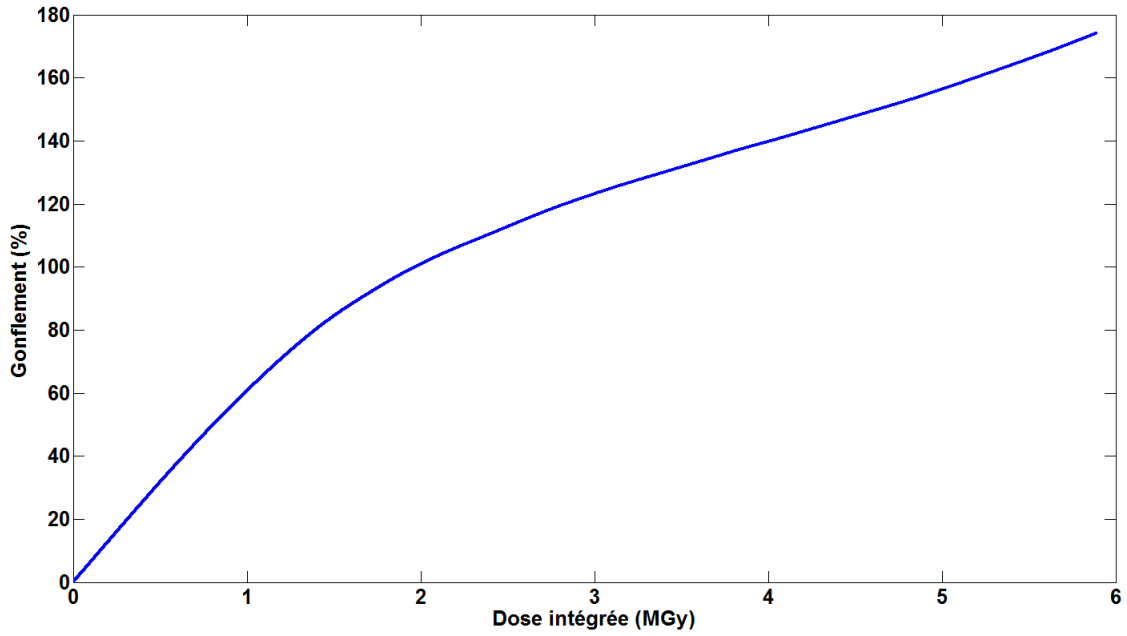


FIGURE 4.31 – Modélisation de l'évolution du gonflement en fonction de la dose intégrée pour un débit de dose de 400 Gy/h

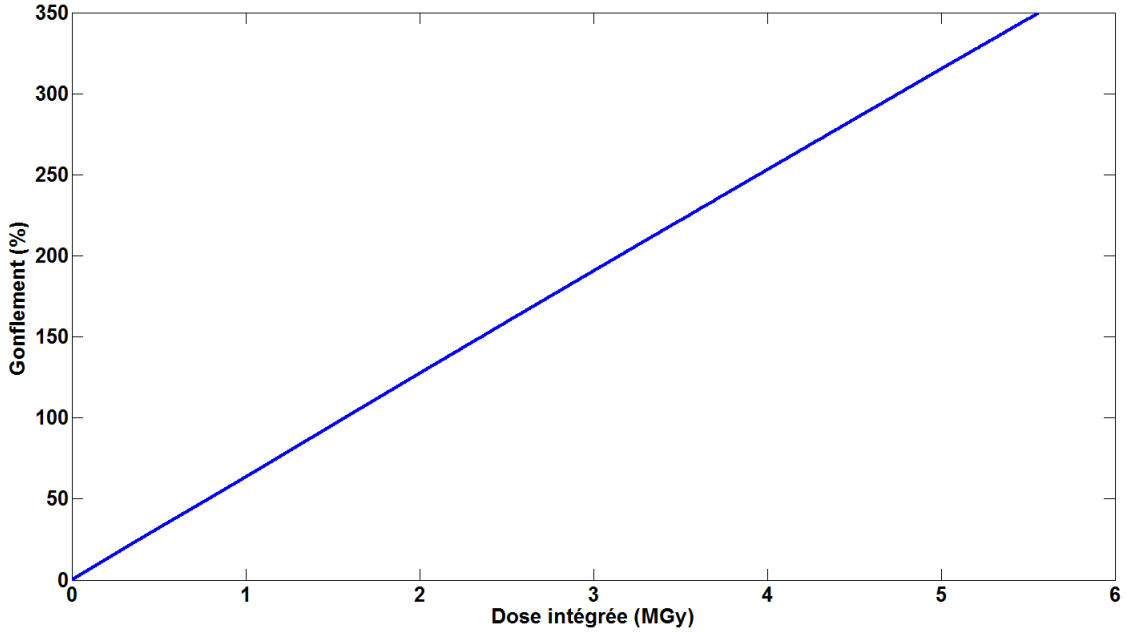


FIGURE 4.32 – Modélisation de l'évolution du gonflement en fonction de la dose intégrée pour un débit de dose de 5000 Gy/h

4.3.2 Simulation d'un fût réel

La simulation d'un fût réel (65 cm de hauteur et 56 cm de diamètre) d'enrobé bitumineux a été réalisée sur une période de 300 ans (figure 4.33). L'évolution du gonflement en fonction du temps est similaire aux cas étudiés précédemment pour des échantillons plus petits (8 cm de hauteur et 8 cm de diamètre) du même matériau et avec le même débit de dose, mais

avec un gonflement plus important du fait de la hauteur plus importante du récipient. Les oscillations observées à partir de 180 ans sont la conséquence d'oscillations de terme source fourni par le logiciel RABBI, comme le montre l'évolution du terme source en fonction du temps.

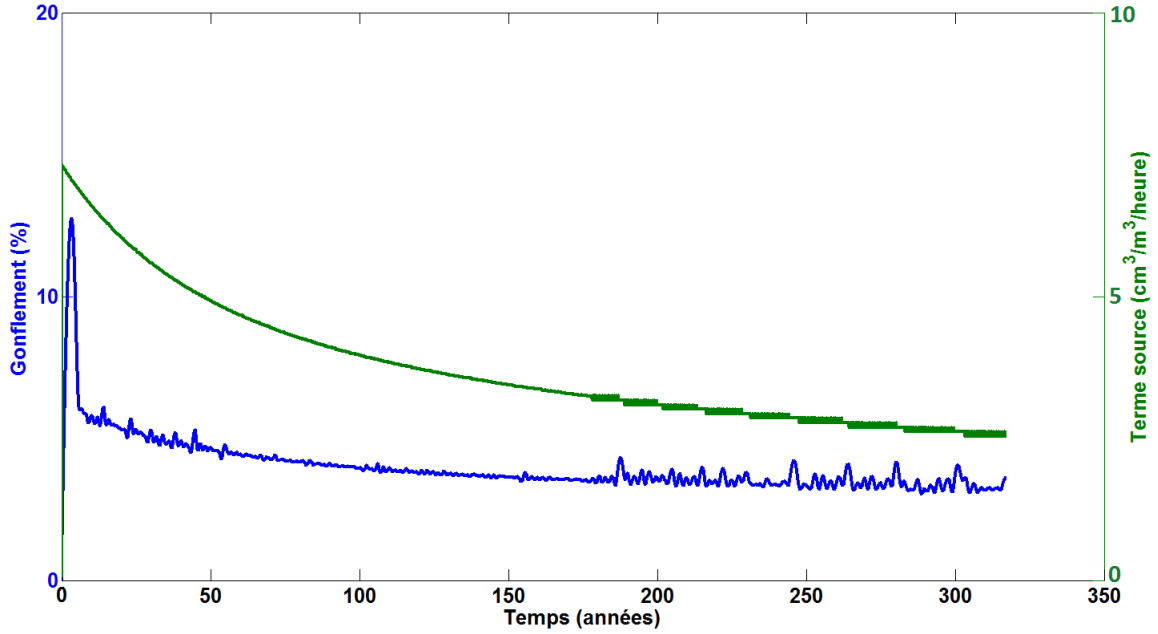


FIGURE 4.33 – Évolution du gonflement en fonction du temps pour un colis de référence

Chapitre 5

Cas particulier d'un fluide à seuil

Sommaire

5.1 Croissance d'une bulle isolée dans un fluide à seuil 132

5.1.1 Croissance hydrodynamique 133

5.1.2 Problème adimensionné 142

5.1.3 Croissance réelle d'une bulle dans un fluide à seuil 142

5.2 Évolution d'une population sans migration 144

5.2.1 Effet qualitatif du seuil sur une population 144

5.2.2 Quantification de l'impact du seuil sur une population 146

5.3 Évolution avec migration sans germination 149

5.3.1 Condition de migration 149

5.3.2 Comportement d'une population 151

5.3.3 Suivi du débit de gaz sortant et du gonflement 155

5.4 Conclusion du chapitre 157

Nous allons présenter ici l'évolution d'une population de bulles dans le cas d'un fluide présentant un seuil d'écoulement. Dans un premier temps, nous exposerons le modèle de fluide à seuil choisi ainsi que les hypothèses nécessaires pour la résolution de la croissance d'une bulle isolée. L'influence d'un seuil d'écoulement sur l'évolution d'une population de bulles sans germination sera ensuite étudiée, d'abord dans le cas d'une population immobile (pas de migration prise en compte), puis en intégrant la migration par poussée d'Archimède.

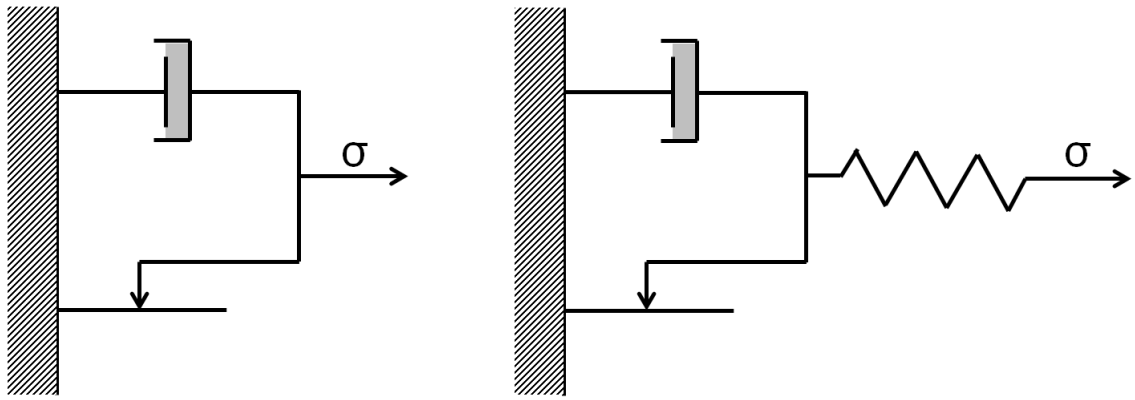
5.1 Croissance d'une bulle isolée dans un fluide à seuil

Les travaux de Mouazen [5] ont montré l'existence d'un seuil d'écoulement pour le bitume, ce qui justifie que son impact sur le comportement d'une population de bulles ait été étudié. Dans un premier temps, nous avons assimilé le bitume à un fluide à seuil décrit par une loi de Bingham [58]. Lorsque l'on applique à un fluide de Bingham une contrainte inférieure à la contrainte seuil, le matériau se comporte comme un solide indéformable, tandis qu'au-delà de cette contrainte, il s'écoule avec une viscosité indépendante du taux de cisaillement. Nous verrons par la suite qu'une modification de ce modèle est nécessaire pour décrire la croissance d'une bulle.

Nous avons établi au chapitre 2 [1] qu'une bulle sous pression engendre un champ de contraintes dans le fluide autour d'elle. La valeur de ces contraintes décroît lorsque l'on s'éloigne de la bulle ($\sigma_{rr} \propto \frac{1}{r^3}$). Le modèle de Bingham strict prévoit qu'aucune déformation n'est possible si la contrainte seuil n'est pas dépassée. En coordonnées sphériques et avec une hypothèse d'incompressibilité, pour qu'une bulle puisse croître, il faudrait vaincre le seuil à une distance infinie de la bulle. Or, ce n'est pas ce qui se passe dans la réalité, car, comme nous l'avons constaté au chapitre 1 à l'aide des images obtenues par microtomographie aux rayons X, les bulles dans le bitume croissent bel et bien. Nous sommes donc amenés à considérer un modèle de Bingham modifié pour décrire la croissance des bulles dans un fluide à seuil (figure 5.1).

Nous considèrerons dans ce travail un fluide à seuil admettant une certaine élasticité. Nous avons fait le choix de ne pas considérer de compressibilité, mais d'admettre une élasticité incompressible. Le fluide sera visqueux et de viscosité constante au-delà du seuil, tandis qu'il pourra admettre une déformation élastique en deçà. Cette hypothèse va nous mener à considérer deux zones pour le fluide autour d'une bulle en croissance. De la surface de la bulle ($r = R$) jusqu'à une distance critique $r = r_l$, le fluide pourra s'écouler ; au-delà de r_l, le fluide se comportera comme un solide élastique caractérisé par un module d'Young E et un coefficient de Poisson de 0,5.

1. en utilisant l'expression de la vitesse de déformation en fonction de r donnée par l'équation (2.4) et la loi de comportement d'un fluide newtonien $\tau_{rr} = 2\eta\dot{\varepsilon}_{rr}$



(a) Modèle de Bingham (b) Modèle de Bingham modifié

FIGURE 5.1 – Schémas de modèles de fluide à seuil

5.1.1 Croissance hydrodynamique

Pour décrire le comportement d'un tel fluide, nous allons avoir besoin de connaître la déformation dans le fluide engendrée par la croissance d'une bulle. Pour cela, calculons d'abord le gradient de la transformation qui, au point matériel initialement à r_0, associe le point situé à r lorsque la bulle fait un rayon R (figure 5.2).

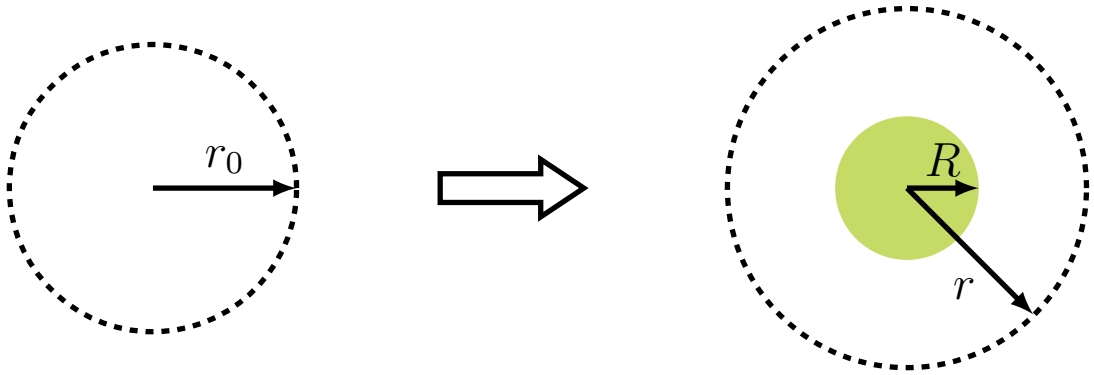


FIGURE 5.2 – Schéma illustrant la transformation associée à la croissance d'une bulle

Dans l'hypothèse d'un fluide incompressible, cette transformation peut être décrite par :

$$r^3 = r_0^3 + R^3 \Rightarrow r = \left(r_0^3 + R^3\right)^{1/3} \tag{5.1}$$

Le gradient de cette transformation s'écrit :

$$\frac{dr}{dr_0} = \frac{r_0^2}{\left(r_0^3 + R^3\right)^{2/3}} \tag{5.2}$$

$$= \left(1 - \left(\frac{R}{r}\right)^3\right)^{2/3} \tag{5.3}$$

Lorsque l'on est assez loin de la bulle dans le fluide (r»R), on fait l'hypothèse de travailler en petites déformations et on peut linéariser l'expression (5.3) :

$$\frac{dr}{dr_0} = 1 - \frac{2}{3}\left(\frac{R}{r}\right)^3 \tag{5.4}$$

La déformation associée dans la direction r est ensuite déterminée :

$$\varepsilon_{rr} = \frac{dr}{dr_0} - 1 = -\frac{2}{3}\left(\frac{R}{r}\right)^3 \tag{5.5}$$

L'hypothèse d'incompressibilité nous indique que $tr(\varepsilon) = 0$ et, par invariance, $\varepsilon_{\theta\theta} = \varepsilon_{\phi\phi}$, d'où :

$$\varepsilon_{\theta\theta} = \varepsilon_{\phi\phi} = \frac{1}{3}\left(\frac{R}{r}\right)^3 \tag{5.6}$$

Écrivons maintenant l'équilibre mécanique dans le fluide :

$$\boldsymbol{\nabla} \cdot \boldsymbol{\sigma} = \rho\left(\frac{\partial \boldsymbol{v}}{\partial t} + \boldsymbol{v}\boldsymbol{\nabla}\boldsymbol{v}\right) - \boldsymbol{f_e} \tag{5.7}$$

$\boldsymbol{v}$ étant le champ de vitesse, ρ la masse volumique du fluide, $\boldsymbol{\sigma}$ le tenseur de contraintes et $\boldsymbol{f_e}$ les efforts extérieurs s'appliquant sur le fluide. Dans notre cas, les efforts extérieurs se compensent et s'annulent et l'on néglige le terme d'inertie, ce qui revient à :

$$-\boldsymbol{\nabla} p + \boldsymbol{\nabla} \cdot \boldsymbol{\tau} = 0 \tag{5.8}$$

$$\Rightarrow \quad -\frac{\partial p}{\partial r} + \left(\frac{\partial \tau_{rr}}{\partial r} + \frac{2\tau_{rr} - \tau_{\theta\theta} - \tau_{\phi\phi}}{r} \right) = 0 \tag{5.9}$$

$$\Rightarrow \quad -\frac{\partial p}{\partial r} + \left(\frac{\partial \tau_{rr}}{\partial r} + \frac{3\tau_{rr}}{r} \right) = 0 \tag{5.10}$$

$$\Rightarrow \quad -\frac{\partial p}{\partial r} + \frac{1}{r^3} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^3 \tau_{rr} \right) = 0 \tag{5.11}$$

Comme montré dans la section 2.2.1 du chapitre 2, l'hypothèse d'incompressibilité se traduit par $\boldsymbol{\nabla} \cdot \boldsymbol{v} = 0$, ce qui implique :

$$\dot{\varepsilon}_{rr} = -2 \frac{R^2}{r^3} \dot{R} \tag{5.12}$$

Notons que dans le cas d'un fluide newtonien ($\tau_{rr} = -4\eta R^2 \dot{R}/r^3$), on a bien $\partial p/\partial r = 0$, d'où une pression constante dans le fluide (en rappelant que l'on a négligé le terme d'inertie) :

$$p(r) = p_\infty \tag{5.13}$$

Nous allons maintenant voir que, dans le cas d'un fluide à seuil, la loi de comportement du fluide ne conduit plus à cette conclusion. La croissance d'une bulle correspond à de la compression pour le fluide et nous allons donc commencer par définir son comportement en compression. Par définition, lorsque l'on comprime un objet dans la direction r, on obtient :

$$\boldsymbol{\sigma} = -p\boldsymbol{Id} + \begin{bmatrix} -\frac{1}{2}\tau_{rr} & 0 & 0 \\ 0 & -\frac{1}{2}\tau_{rr} & 0 \\ 0 & 0 & \tau_{rr} \end{bmatrix} \Rightarrow p = -\frac{1}{2}\tau_{rr} \quad \text{et} \quad \sigma_{rr} = \frac{3}{2}\tau_{rr} \tag{5.14}$$

Pour la modélisation du fluide à seuil présentée dans ce travail (fluide newtonien au-delà de la contrainte seuil et solide élastique en deçà), nous allons avoir besoin de définir une viscosité en compression η_c et un module élastique en compression E_c.

En supposant un fluide newtonien, nous avons :

$$\dot{\boldsymbol{\varepsilon}} = \begin{bmatrix} -\frac{1}{2}\dot{\alpha} & 0 & 0 \\ 0 & -\frac{1}{2}\dot{\alpha} & 0 \\ 0 & 0 & \dot{\alpha} \end{bmatrix} \tag{5.15}$$

ce qui nous permet de définir la viscosité en compression η_c :

$$\eta_c = \frac{\sigma_{rr}}{\dot{\alpha}} = \frac{3\tau_{rr}}{2\dot{\alpha}} \tag{5.16}$$

Le tenseur des contraintes pour un fluide newtonien incompressible en compression peut alors être exprimé par :

$$\boldsymbol{\sigma} = -p\boldsymbol{Id} + \frac{2}{3}\eta_c\dot{\boldsymbol{\varepsilon}} \tag{5.17}$$

De manière similaire, en supposant un solide élastique, nous introduisons le module élastique en compression E_c et le tenseur des contraintes pour un solide élastique en compression s'écrit alors :

$$\boldsymbol{\sigma} = -p\boldsymbol{Id} + \frac{2}{3}E_c\boldsymbol{\varepsilon} \tag{5.18}$$

Lorsque l'on charge le fluide, il commence de s'écouler pour $\|\boldsymbol{\sigma}\| \geq \sigma_y$, σ_y désignant la contrainte seuil. Or, la définition de la norme matricielle nous donne :

$$\|\boldsymbol{\sigma}\| = \sqrt{\Sigma\sigma_{ij}^2} = \sqrt{\sigma_{rr}^2} = \frac{3}{2}|\tau_{rr}| \tag{5.19}$$

et

$$\|\boldsymbol{\tau}\| = \sqrt{\Sigma\tau_{ij}^2} = \sqrt{\frac{3}{2}\tau_{rr}^2} = \sqrt{\frac{3}{2}}|\tau_{rr}| \tag{5.20}$$

Pour reprendre le formalisme de Bingham, où la condition de croissance repose sur la norme de la partie déviatorique des contraintes $\|\boldsymbol{\tau}\|$, nous redéfinissons la norme comme

suit :

$$\|\boldsymbol{\tau}\| = \sqrt{\frac{3}{2}\Sigma\tau_{ij}^2} \tag{5.21}$$

Nous pouvons ainsi écrire l'équation de Bingham :

$$max\left(0, \frac{\|\boldsymbol{\tau}\| - \sigma_y}{\|\boldsymbol{\tau}\|}\right)\boldsymbol{\tau} = \frac{2}{3}\eta_c\dot{\boldsymbol{\varepsilon}} \tag{5.22}$$

Bulle en croissance

Au-dessus du seuil (pour $r < r_l$) et pour une bulle qui croît ($\dot{R} > 0$), dans la direction r en coordonnées sphériques, l'équation de Bingham devient :

$$\tau_{rr} - \tau_{rr}\frac{\sigma_y}{\|\boldsymbol{\tau}\|} = \frac{2}{3}\eta_c\dot{\varepsilon}_{rr} \tag{5.23}$$

$$\Rightarrow \quad \tau_{rr} = \frac{2}{3}\eta_c\dot{\varepsilon}_{rr} + \sigma_y\frac{\tau_{rr}}{\sqrt{\frac{3}{2}\Sigma\tau_{ij}^2}} \tag{5.24}$$

$$\Rightarrow \quad \tau_{rr} = \frac{2}{3}\eta_c\dot{\varepsilon}_{rr} + \sigma_y\frac{2\tau_{rr}}{3|\tau_{rr}|} \tag{5.25}$$

$$\Rightarrow \quad \tau_{rr} = \frac{2}{3}\eta_c\dot{\varepsilon}_{rr} - \frac{2}{3}\sigma_y \ \text{ car } \ \tau_{rr} < 0 \tag{5.26}$$

$$\Rightarrow \quad \tau_{rr} = -\frac{4}{3}\eta_c\frac{R^2}{r^3}\dot{R} - \frac{2}{3}\sigma_y \tag{5.27}$$

En deçà du seuil (pour $r > r_l$), le fluide subit une déformation élastique. En utilisant l'équation (5.18), on obtient :

$$\tau_{rr} = \frac{2}{3}E_c\varepsilon_{rr} \tag{5.28}$$

La limite élastique est atteinte pour $\|\boldsymbol{\sigma}\| = \sigma_y$. Or, $\|\boldsymbol{\sigma}\| = 3|\tau_{rr}|/2$. La déformation élastique maximale ε_l est donc définie par :

$$\sigma_y = E_c \varepsilon_l \tag{5.29}$$

en admettant un module d'Young en compression E_c très grand et une déformation élastique maximale ε_l très petite pour avoir un comportement proche d'un fluide de Bingham strict.

En utilisant l'équation (5.5), le rayon r_l pour lequel la limite d'élasticité est atteinte est donné par :

$$\varepsilon_l = \frac{2}{3}\left(\frac{R}{r_l}\right)^3 \Longrightarrow r_l = R\left(\frac{3}{2}\varepsilon_l\right)^{-1/3} \tag{5.30}$$

Ce modèle a l'inconvénient de présenter une discontinuité de contrainte à la limite élastique [2] (saut égal à $-(4\eta_c \dot{R} R^2)/3r_l^3$). Cette discontinuité est très faible si l'on suppose r_l assez grand, donc si l'on suppose ε_l petit avec E_c grand. Elle est représentée sur la figure 5.3 pour un fluide présentant un module d'élasticité en compression $E_c = 400$ Pa dans son domaine élastique. Nous avons pris cette valeur de module pour pouvoir représenter un majorant de la discontinuité. Dans la suite de ce travail, nous considérerons un module élastique $E_c = 10^9$ Pa, ce qui implique une discontinuité beaucoup plus faible.

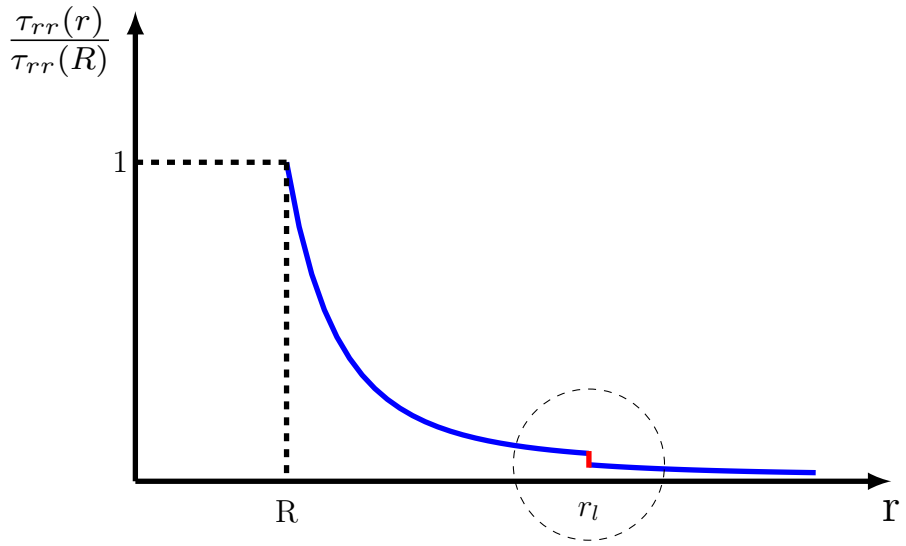


FIGURE 5.3 – Représentation de la discontinuité de contrainte pour un fluide hypothétique dont le module élastique en compression E_c vaudrait 400 Pa

2. car aucune viscosité n'est associée à la déformation élastique au-delà de r_l, elle n'engendre donc pas de contrainte visqueuse.

Saramito [59] a néanmoins corrigé ce problème en introduisant une viscosité associée à la vitesse de déformation dans le domaine élastique, l'objectivité étant ainsi respectée. Le fluide n'est alors plus vu comme un solide élastique en-deçà du seuil, mais comme un solide viscoélastique selon un modèle de Kelvin-Voigt. Et, au-delà du seuil, le fluide est considéré comme un fluide viscoélastique selon un modèle de Oldroyd [60]. La démonstration et l'application de ce modèle en coordonnées sphériques sortent des objectifs de ce travail.

Pour $r > r_l$, lorsque le fluide est dans le domaine élastique, nous avons :

$$\tau_{rr} = \frac{2}{3} E_c \varepsilon_{rr} = -\frac{4}{9} E_c \left(\frac{R}{r}\right)^3 \tag{5.31}$$

Pour $r \leq r_l$, lorsque le fluide est dans le domaine visqueux, nous avons l'équation (5.27).

Nous allons maintenant nous intéresser au champ de pression dans le fluide autour de la bulle en croissance. Considérons d'abord la zone où le fluide est considéré comme un solide élastique ($r > r_l$) et intégrons l'équation (5.11) de r_l à r_∞, en notant que $r^3 \tau_{rr} = -(4/9) E_c R^3$:

$$\frac{\partial p}{\partial r} = \frac{1}{r^3} \frac{\partial}{\partial r} \left(-(4/9) E_c R^3\right) \tag{5.32}$$

$$\Rightarrow \quad \frac{\partial p}{\partial r} = 0 \tag{5.33}$$

$$\Rightarrow \quad p(r \geq r_l) = p_\infty \tag{5.34}$$

La pression est donc constante dans le fluide au-delà du rayon limite r_l.

Considérons désormais la zone où le fluide est soumis à une contrainte supérieure à son seuil d'écoulement et où il peut s'écouler avec une viscosité constante. Nous intégrons l'équation (5.11) de R à r_l en substituant τ_{rr} à partir de l'équation (5.27) :

$$\int_R^{r_l} \frac{\partial p}{\partial r} dr = \int_R^{r_l} \frac{1}{r^3} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^3 \tau_{rr}\right) dr \tag{5.35}$$

$$= -\int_R^{r_l} \frac{2\sigma_y}{r} dr \tag{5.36}$$

$$\Rightarrow \quad [p]_R^{r_l} = -\left[2\sigma_y \mathrm{Ln}(r)\right]_R^{r_l} \tag{5.37}$$

$$\Rightarrow \quad p(r_l) - p(R) = -2\sigma_y \mathrm{Ln}\left(\frac{r_l}{R}\right) \tag{5.38}$$

Ensuite, l'équation (5.30) nous donne :

$$\frac{r_l}{R} = \left(\frac{3}{2}\varepsilon_l\right)^{-1/3} \tag{5.39}$$

et, en la combinant avec l'équation (5.38), la pression à la surface de la bulle peut s'écrire :

$$\begin{aligned} p(R) &= p_\infty + 2\sigma_y \mathrm{Ln}\left(\frac{3}{2}\varepsilon_l\right)^{-1/3} && (5.40)\\ &= p_\infty - \frac{2}{3}\sigma_y \mathrm{Ln}\left(\frac{3}{2}\varepsilon_l\right) && (5.41) \end{aligned}$$

Écrivons maintenant le bilan des contraintes normales à l'interface de la bulle, qui va nous conduire à l'équation de croissance d'une bulle :

$$\begin{aligned} \sigma_{rr}(R_-) - \sigma_{rr}(R_+) + \frac{2\gamma}{R} &= 0 && (5.42)\\ \Rightarrow \quad -p_i - (-p(R) + \tau_{rr}(R)) &= -\frac{2\gamma}{R} && (5.43)\\ \Rightarrow \quad p_i - p_\infty &= -\frac{2}{3}\sigma_y \mathrm{Ln}\left(\frac{3}{2}\varepsilon_l\right) + \frac{4}{3}\eta_c \frac{R^2}{R^3}\dot{R} + \frac{2}{3}\sigma_y + \frac{2\gamma}{R} && (5.44)\\ \Rightarrow \quad 4\eta\frac{\dot{R}}{R} &= (p_i - p_\infty) - \frac{2\gamma}{R} + \frac{2}{3}\sigma_y\left(\mathrm{Ln}\left(\frac{3}{2}\varepsilon_l\right) - 1\right) && (5.45) \end{aligned}$$

p_i étant la pression à l'intérieur de la bulle, $p(R)$ la pression dans le fluide à la surface de la bulle, γ la tension de surface gaz/fluide et η_c la viscosité en compression et η la viscosité en cisaillement. Notons que, pour une contrainte seuil nulle ($\sigma_y = 0$), on retrouve bien l'équation de croissance d'une bulle dans un fluide newtonien (2.14) établie au chapitre 2.

Bulle en décroissance

Nous avons vu que la présence d'un seuil d'écoulement modifiait les équations de croissance d'une bulle, mais nous n'avons jusqu'à présent parlé que du cas de la croissance ($\|\boldsymbol{\sigma}\| > \sigma_y$ et $\dot{R} > 0$). Étudions maintenant le cas de la décroissance ($\|\boldsymbol{\sigma}\| > \sigma_y$ et $\dot{R} < 0$).

La différence majeure est que, dans ce cas, le fluide ne subit pas de la compression mais de la traction et $\dot{R} < 0$, ce qui implique $\tau_{rr} > 0$, d'où :

$$\tau_{rr} = -\frac{4}{3}\eta_c \frac{R^2}{r^3}\dot{R} + \frac{2}{3}\sigma_y \tag{5.46}$$

$$\Rightarrow \quad p(R) = p_\infty + \frac{2}{3}\sigma_y \mathrm{Ln}\left(\frac{3}{2}\varepsilon_l\right) \tag{5.47}$$

L'équation de décroissance de la bulle est alors donnée par :

$$4\eta\frac{\dot{R}}{R} = (p_i - p_\infty) - \frac{2\gamma}{R} - \frac{2}{3}\sigma_y\left(\mathrm{Ln}\left(\frac{3}{2}\varepsilon_l\right) - 1\right) \tag{5.48}$$

Bulle figée

La particularité du fluide à seuil réside dans la possibilité pour une bulle d'être figée. En effet, lorsque $\|\boldsymbol{\sigma}\| < \sigma_y$ à la surface de la bulle (et *a fortiori* pour tout r, vu que la contrainte dans le fluide décroît lorsque l'on s'éloigne de la bulle), celle-ci ne peut ni croître, ni décroître, on a $\dot{R} = 0$. Pour simplifier l'écriture, nous introduisons le nombre sans dimension $K_y(\varepsilon_l)$:

$$K_y(\varepsilon_l) = -\frac{2}{3}\left(\mathrm{Ln}\left(\frac{3}{2}\varepsilon_l\right) - 1\right) \tag{5.49}$$

Le comportement d'une bulle en régime hydrodynamique dans un fluide à seuil est ainsi régi par un système de 3 équations :

$$4\eta\frac{\dot{R}(t)}{R(t)} = p_i(t) - p_\infty - \frac{2\gamma}{R(t)} - K_y(\varepsilon_l)\sigma_y \quad \text{si} \quad \|\boldsymbol{\sigma}\| > \sigma_y \quad \text{et} \quad \dot{R} > 0 \tag{5.45}$$

$$4\eta\frac{\dot{R}(t)}{R(t)} = p_i(t) - p_\infty - \frac{2\gamma}{R(t)} + K_y(\varepsilon_l)\sigma_y \quad \text{si} \quad \|\boldsymbol{\sigma}\| > \sigma_y \quad \text{et} \quad \dot{R} < 0 \tag{5.48}$$

$$\dot{R}(t) = 0 \quad \text{si} \quad \|\boldsymbol{\sigma}\| < \sigma_y \tag{5.50}$$

5.1.2 Problème adimensionné

En reprenant le formalisme du chapitre 2 pour l'adimensionnement des équations et en introduisant le nombre adimensionnel $\beta = \sigma_y K_y(\varepsilon_l)/p_\infty$, le système d'équations adimensionnées régissant la croissance hydrodynamique d'une bulle dans un fluide à seuil s'écrit :

$$\theta_h \dot{\tilde{R}} = \tilde{R}(s_R - 1) - 1 - \tilde{R}\beta \qquad \text{si} \qquad s_R > \frac{1}{\tilde{R}} + \beta + 1 \tag{5.51}$$

$$\theta_h \dot{\tilde{R}} = \tilde{R}(s_R - 1) - 1 - \tilde{R}\beta \qquad \text{si} \qquad s_R < \frac{1}{\tilde{R}} - \beta + 1 \tag{5.52}$$

$$\dot{\tilde{R}} = 0 \qquad \text{si} \qquad \frac{1}{\tilde{R}} - \beta + 1 < s_R < \frac{1}{\tilde{R}} + \beta + 1 \tag{5.53}$$

5.1.3 Croissance réelle d'une bulle dans un fluide à seuil

La croissance réelle d'une bulle repose sur la combinaison des croissances hydrodynamique et diffusive. Cette dernière demeure inchangée entre le cas d'un fluide à seuil et d'un fluide newtonien. Les équations qui la régissent ont été présentées dans la section 2.2.2 du chapitre 2 et nous ne les redétaillerons pas ici. Rappelons simplement que les caractéristiques du bitume nous ont menés à considérer la croissance des bulles comme étant purement diffusive. L'équation adimensionnée de croissance d'une bulle en régime diffusif établie au chapitre 2 est :

$$\dot{\tilde{R}} = \frac{S_o}{\tilde{R}\theta_d}\left(\frac{1+\varepsilon}{s_R} - 1\right) \tag{5.54}$$

Dans le cas d'un fluide newtonien et sous l'hypothèse d'une croissance très lente, nous avions $s_R = 1 + 1/\tilde{R}$, ce qui n'est plus le cas pour un fluide à seuil. En effet, pour ce dernier, l'équation de croissance hydrodynamique (5.52) quasi-statique ($\dot{\tilde{R}} \simeq 0$ avec $\dot{\tilde{R}} > 0$) nous donne :

$$\theta_h \dot{\tilde{R}} \simeq 0 \tag{5.55}$$

$$\Rightarrow \quad \tilde{R}(s_R - 1) - 1 - \tilde{R}\beta \simeq 0 \tag{5.56}$$

$$\Rightarrow \quad \tilde{R}(s_R - 1) - \tilde{R}\beta \simeq 1 \tag{5.57}$$

$$\Rightarrow \quad s_R \simeq 1 + \beta + \frac{1}{\tilde{R}} \tag{5.58}$$

En substituant s_R dans l'équation (5.54), nous obtenons :

$$\dot{\tilde{R}} = \frac{S_o}{\tilde{R}\theta_d}\left(\frac{1+\varepsilon}{1+1/\tilde{R}+\beta} - 1\right) \tag{5.59}$$

La condition de croissance d'une bulle ($\dot{\tilde{R}} > 0$) s'exprime alors ainsi :

$$\frac{1+\varepsilon}{1+1/\tilde{R}+\beta} - 1 \quad > \quad 0 \tag{5.60}$$

$$\Rightarrow \quad 1+\varepsilon \quad > \quad 1 + \frac{1}{\tilde{R}} + \beta \tag{5.61}$$

$$\Rightarrow \quad \tilde{R} \quad > \quad \frac{1}{\sup(0, \varepsilon - \beta)} \tag{5.62}$$

En menant un raisonnement analogue pour la décroissance d'une bulle, on arrive à ce système pour la vitesse de croissance réelle des bulles dans un fluide à seuil :

$$\dot{\tilde{R}} \quad = \quad \frac{S_o}{\tilde{R}\theta_d}\left(\frac{1+\varepsilon}{1+1/\tilde{R}+\beta} - 1\right) \qquad \text{si} \qquad \tilde{R} > \frac{1}{\sup(0, \varepsilon - \beta)} \tag{5.63}$$

$$\dot{\tilde{R}} \quad = \quad \frac{S_o}{\tilde{R}\theta_d}\left(\frac{1+\varepsilon}{1+1/\tilde{R}-\beta} - 1\right) \qquad \text{si} \qquad \tilde{R} < \frac{1}{\varepsilon + \beta} \tag{5.64}$$

$$\dot{\tilde{R}} \quad = \quad 0 \qquad \text{si} \qquad \frac{1}{\varepsilon+\beta} \leq \tilde{R} \leq \frac{1}{\sup(0, \varepsilon - \beta)} \tag{5.65}$$

Pour connaître l'évolution d'une population de bulles, il faut alors résoudre le problème composé de l'équation de continuité (5.66), des équations de croissance des bulles (5.63) à (5.65), de l'équation d'évolution de la concentration en gaz dans la matrice (5.67), correspondant à un bilan de masse, et des équations (5.68) à (5.70) donnant la pression dans la bulle en fonction de sa taille :

$$\frac{\partial f(\tilde{R}, z, t)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial z}\Big(v_z f(\tilde{R}, z, t)\Big) + \frac{\partial}{\partial \tilde{R}}\Big(\dot{\tilde{R}}(t) f(\tilde{R}, z, t)\Big) = \psi_s, \tag{5.66}$$

$$\dot{\varepsilon} = \dot{S} - \frac{4\pi}{3}\frac{\partial}{\partial t}\left(\int_0^\infty \tilde{R}^3 f(\tilde{R}) s_i(\tilde{R}) d\tilde{R}\right)\Bigg|_{\text{restreint à la croissance}} + g_d \tag{5.67}$$

où ψ_s désigne le terme de germination, $\dot{S}$ désigne le terme source et g_d correspond à la variation de concentration de gaz due à la diffusion.

$$s_i = \frac{1+\frac{1}{\tilde{R}}+\beta}{S_o} \quad \text{si} \quad \tilde{R} > \frac{1}{\sup(0,\varepsilon-\beta)} \tag{5.68}$$

$$s_i = \frac{1+\frac{1}{\tilde{R}}-\beta}{S_o} \quad \text{si} \quad \tilde{R} < \frac{1}{\varepsilon+\beta} \tag{5.69}$$

$$s_i = \frac{1+\varepsilon}{S_o} \quad \text{si} \quad \frac{1}{\varepsilon+\beta} \leq \tilde{R} \leq \frac{1}{\sup(0,\varepsilon-\beta)} \tag{5.70}$$

5.2 Évolution d'une population de bulles sans migration

Dans l'ensemble de cette section, nous étudierons le cas de l'évolution d'une population de bulles initialement présente dans le pot (aucune germination ne sera considérée). Les simulations présentées dans cette section ont été réalisées pour une population initiale en forme de gaussienne, avec un rayon moyen de 60 µm, avec les paramètres suivants : fraction volumique initiale égale à 0,01, débit de dose de $10\,\mathrm{Gy\,h^{-1}}$, $\varepsilon_0 = 0{,}01$, $\mathrm{D} = 5\times10^{-11}\,\mathrm{m\,s^{-1}}$, $\gamma = 0{,}03\,\mathrm{N\,m^{-1}}$, $p_\infty = 10^5\,\mathrm{Pa}$.

5.2.1 Effet qualitatif du seuil sur une population

L'évolution d'une population de bulles dans un fluide newtonien a été étudiée dans le chapitre 4. Nous avons vu que, dans le cas où nous ne prenons pas la migration en compte et quels que soient les paramètres du fluide, la distribution de bulles converge vers une forme asymptotique sous l'influence du mûrissement d'Ostwald. Il n'en est pas de même lorsque la population évolue dans un fluide présentant un seuil d'écoulement.

Il a été montré dans les sections précédentes qu'une bulle dans un fluide à seuil peut être soit en croissance, soit en décroissance, soit être figée. Cela va avoir un impact sur l'évolution d'une population en piégeant certaines bulles, comme nous pouvons le constater sur les figures 5.4 et 5.5.

La figure 5.4 présente l'évolution d'une population de bulles au cours du temps dans un fluide newtonien (les barres verticales montrent le rayon limite de croissance/décroissance des bulles de la population pour chaque instant). Nous observons une convergence de la distribution vers un régime de LSW, conformément à ce qui a été montré au chapitre 4. La figure 5.5 présente quant à elle l'évolution de la même population initiale dans un fluide avec un seuil d'écoulement de 4 Pa (les barres verticales montrent le rayon minimum de

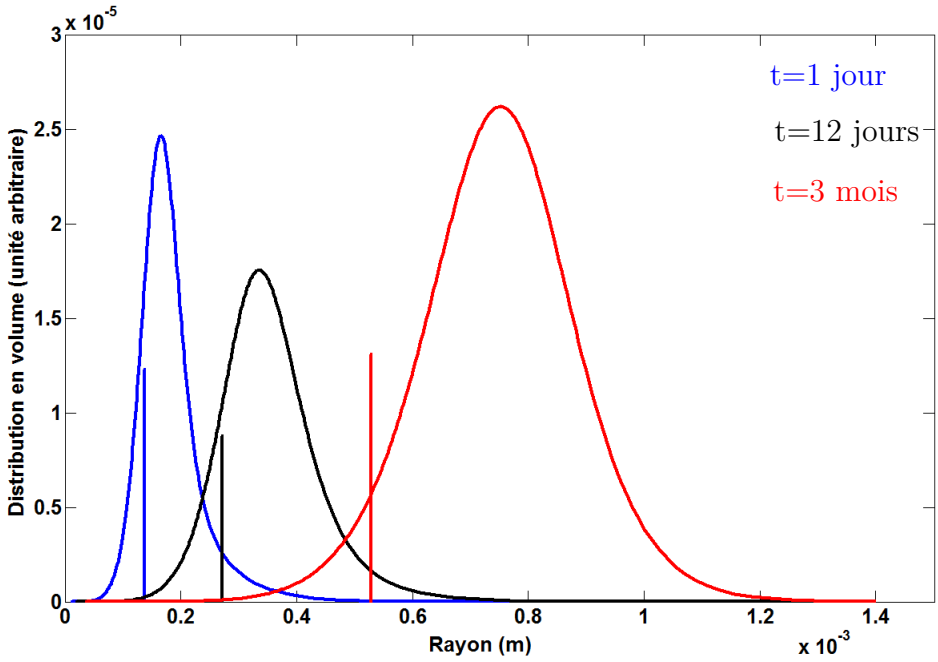


FIGURE 5.4 – Évolution de la distribution en volume d'une population de bulles en fonction du temps dans un fluide newtonien

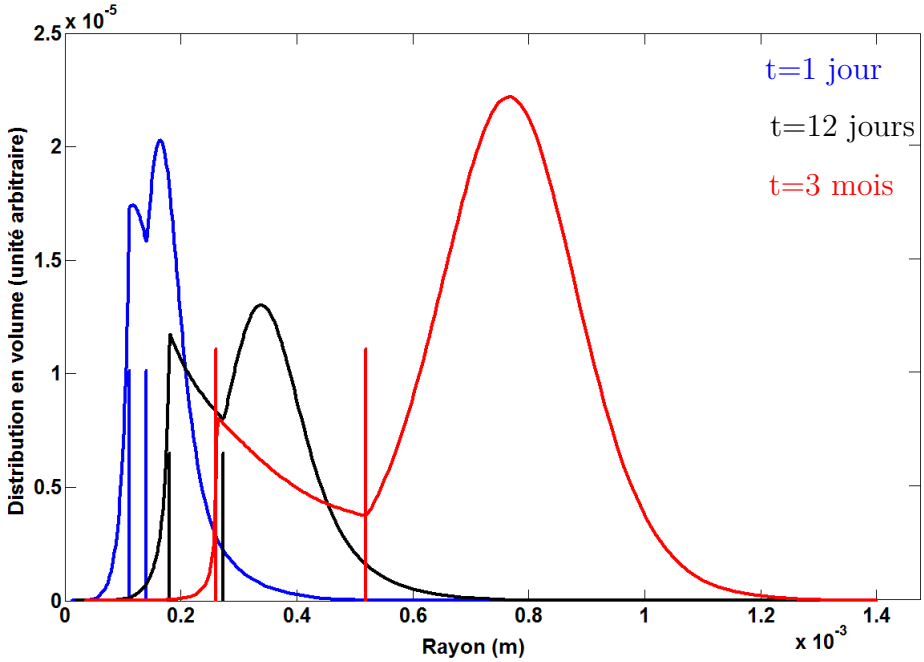


FIGURE 5.5 – Évolution de la distribution en volume d'une population de bulles en fonction du temps dans un fluide à seuil, σ_y=4 Pa

croissance et le rayon maximum de décroissance). On remarque alors qu'une partie de la population (correspondant aux plus grosses bulles) va croître de manière analogue au cas du fluide newtonien, tandis qu'une autre partie (correspondant à des rayons plus faibles) va être piégée.

Les bulles dont le rayon adimensionné $\tilde{R}$ est compris entre $1/(\varepsilon+\beta)$ et $1/(\sup(0,\varepsilon-\beta))$ ont une vitesse de croissance nulle. On remarque que cette gamme de bulles piégées s'élargit au cours du temps et se décale vers les grands rayons. Ceci est la conséquence de l'appauvrissement de la matrice en gaz saturé. En effet, pour $\varepsilon > \beta$, lorsque la sursaturation ε diminue, la valeur des rayons critiques de croissance et de décroissance augmente, ainsi que la largeur de piégeage L_p :

$$L_p = \frac{1}{\varepsilon - \beta} - \frac{1}{\varepsilon + \beta} = \frac{2\beta}{\varepsilon^2 - \beta^2} \tag{5.71}$$

Au cours de son évolution, une population de bulles dans un fluide à seuil va être scindée eu deux. L'effet du seuil va donc à l'encontre du mûrissement, qui a tendance à faire converger la distribution vers une distribution en un seul pic.

5.2.2 Quantification de l'impact du seuil sur une population

Dans cette section, nous allons étudier l'influence d'un seuil d'écoulement sur l'évolution d'une population pour plusieurs valeurs du seuil. Comme précédemment, les barres verticales correspondent aux rayons limites de croissance et de décroissance des bulles pour chaque population. Les distributions sont ici représentées en volume pour mieux appréhender l'effet du seuil, notamment lorsque sa valeur est élevée. En effet, la représentation de la distribution de bulles en nombre dans le cas du seuil valant 40 Pa montrerait un grand nombre de bulles dans la zone où la croissance est nulle et très peu de bulles pouvant croître, alors que ces dernières représentent en réalité la majeure partie du volume total.

Les figures 5.6 à 5.9 montrent que l'augmentation du seuil entraîne l'élargissement de la gamme de rayons pour lesquels les bulles sont figées. Ce résultat est expliqué par l'équation (5.71) exprimant la largeur de la gamme de piégeage en fonction du seuil β et de la sursaturation ε. Ces observations nous permettent de conclure qu'en dessous d'une certaine valeur (environ 1 Pa), le seuil d'écoulement n'a pas d'effet significatif sur l'évolution d'une population. En effet, nous constatons sur la figure 5.7 que, malgré un certain nombre de bulles piégées, la forme globale de la distribution reste très proche du cas du fluide newtonien (figure 5.6).

Le seuil d'écoulement d'un enrobé bitumineux déterminé par Mouazen [5] à 70 °C est de l'ordre de 0,5 Pa pour des paramètres d'extrusion d'enrobé proches du cas industriel. De plus, il a étudié la dépendance en température du seuil sur un bitume pur (la matrice de l'enrobé). Il a constaté qu'au-delà de 50 °C la valeur du seuil est indépendante de la

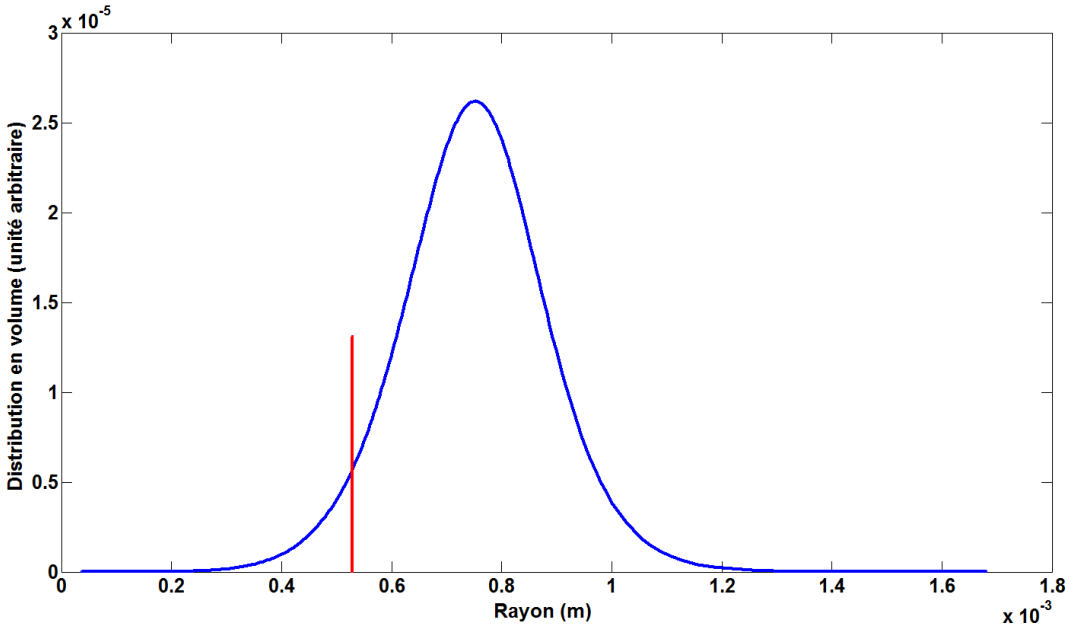


FIGURE 5.6 – Distribution en volume d'une population dans un fluide newtonien au bout de 3 mois

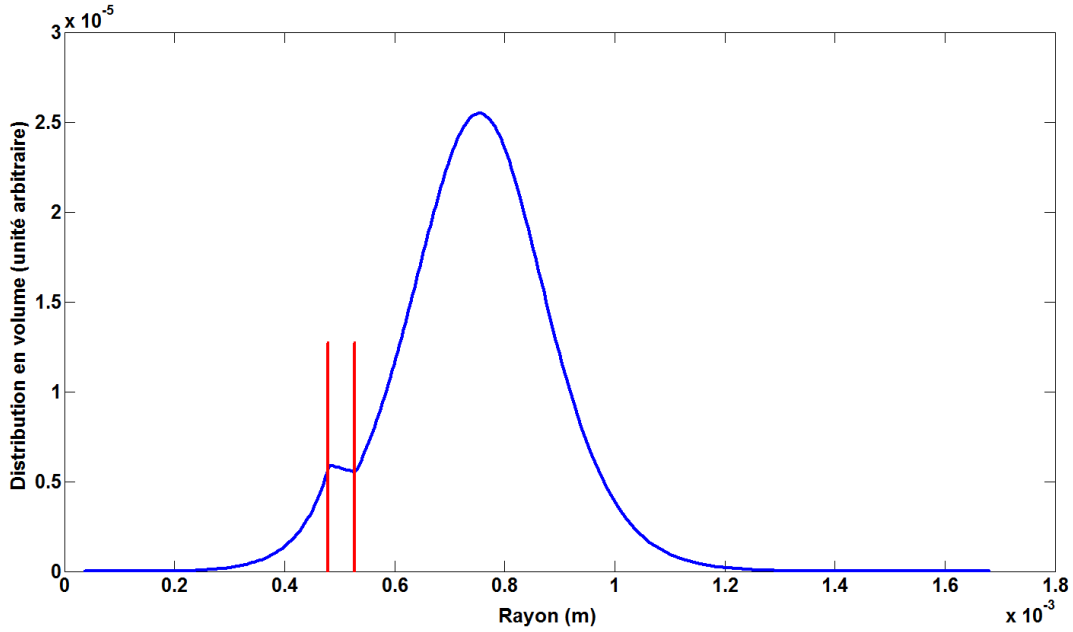


FIGURE 5.7 – Distribution en volume d'une population dans un fluide à seuil au bout de 3 mois, σ_y=0,4 Pa

température. En revanche, en-deçà de 50 °C, le seuil augmente fortement lorsque la température diminue ($\sigma_y = 5$ mPa à 50 °C et 70 °C et $\sigma_y = 0{,}3$ Pa à 22 °C). L'influence de la température sur le seuil d'écoulement d'enrobés bitumineux n'a pas été étudiée mais une extrapolation peut nous permettre d'estimer l'ordre de grandeur du seuil dans un enrobé. Ainsi, si un facteur 60 est appliqué au seuil lorsque la température passe de 70 °C à 22 °C,

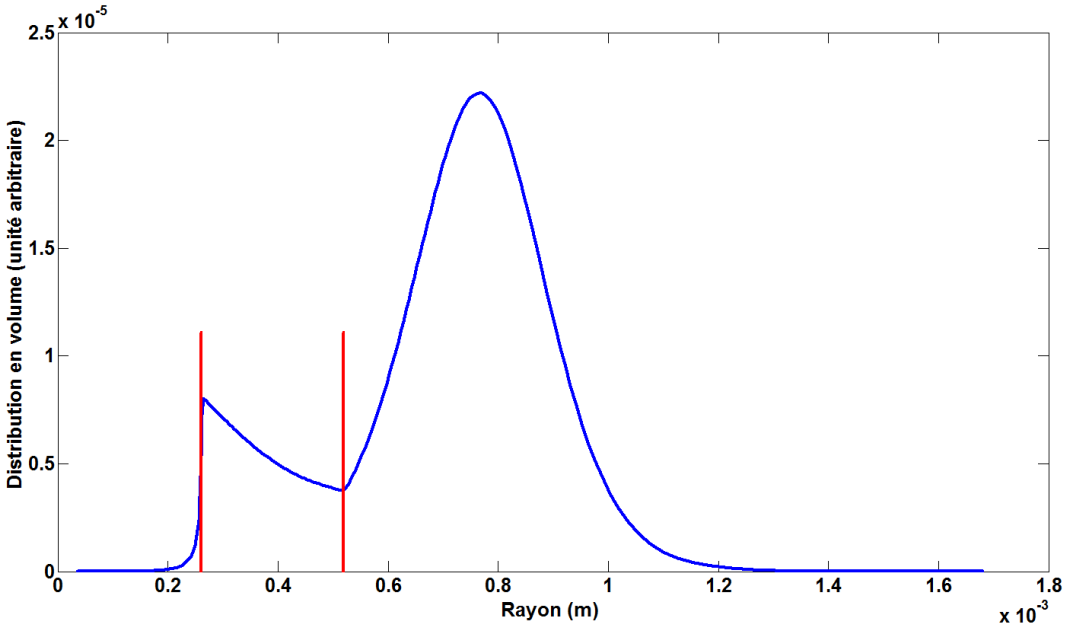


FIGURE 5.8 – Distribution en volume d'une population dans un fluide à seuil au bout de 3 mois, σ_y=4 Pa

une valeur du seuil de l'enrobé de 0,5 Pa à 70 °C conduirait à un seuil de 30 Pa à température ambiante. L'enrobé bitumineux ne pourrait alors plus être considéré newtonien au regard des résultats obtenus précédemment.

Néanmoins, des caractérisations rhéologiques supplémentaires sont nécessaires pour valider cette valeur extrapolée du seuil. Pour cela nous ne considérerons plus le cas d'un enrobé bitumineux en particulier dans la suite de ce chapitre, mais le cas de fluides dont le seuil est juste suffisant pour observer des conséquences notoires sur le gonflement (ressauts de gonflement) et le débit de gaz sortant (évacuation du gaz en plusieurs salves).

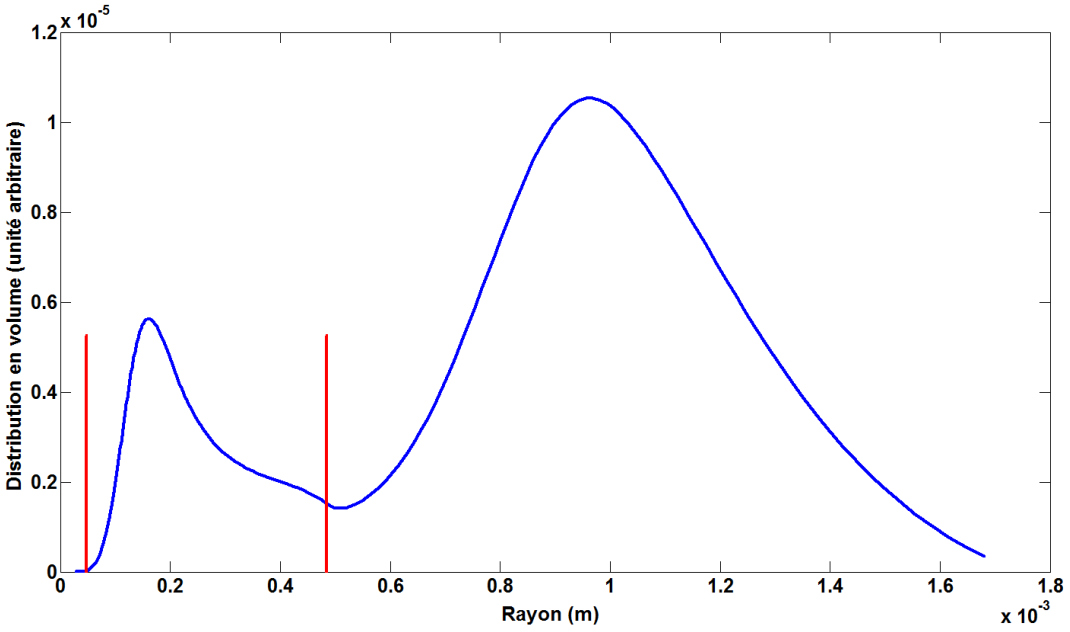


FIGURE 5.9 – Distribution en volume d'une population dans un fluide à seuil au bout de 3 mois, σ_y=40 Pa

5.3 Évolution d'une population avec migration sans germination

Dans l'ensemble de cette section, nous étudierons, comme dans la section précédente, le cas de l'évolution d'une population de bulles initialement présentes dans le pot. Aucune germination ne sera considérée.

5.3.1 Condition de migration

Après avoir étudié l'effet d'un seuil d'écoulement sur l'évolution d'une population de bulles sans prise en compte de la migration, nous allons nous intéresser à son impact sur la migration des bulles. Nous considérerons dans cette étude que, pour qu'une bulle puisse se mouvoir dans un fluide à seuil, il faut que la contrainte engendrée par la poussée d'Archimède soit supérieure au seuil d'écoulement. La condition de migration d'une bulle dans un fluide à seuil est en réalité plus complexe que cela [61, 62], mais cette approximation est jugée suffisante pour notre étude, qui se veut qualitative, de l'effet du seuil sur une population.

Nous supposerons également que les bulles restent de forme sphérique lorsqu'elles se meuvent, qu'il n'existe pas de chemin privilégié suite au passage d'une bulle et qu'elles atteignent une vitesse terminale quelle que soit leur taille. Ces trois hypothèses ne sont pas vérifiées dans la réalité [63, 64, 65], mais la complexité de la migration d'une bulle dans un fluide à seuil sort des objectifs de ce travail et nécessiterait une étude dédiée. De même, la croissance d'une bulle dans un fluide à seuil lorsqu'elle migre est différente de la croissance d'une bulle immobile. En effet, la zone de fluide autour de la bulle où la

contrainte dépasse la contrainte seuil n'est plus une calotte sphérique [66, 67, 68].

La migration d'une bulle dans un fluide à seuil est donc en réalité beaucoup plus complexe que cela. Néanmoins, cette approximation de la condition de migration, ainsi que de la vitesse, est suffisante pour notre étude, qui se veut qualitative, de l'effet du seuil sur une population.
Écrivons la contrainte σ_a induite par poussée d'Archimède dans le fluide pour une bulle de rayon R :

$$\sigma_a = \frac{\Delta\rho g V}{S} = \frac{\Delta\rho g R}{3} \tag{5.72}$$

où V représente le volume de la bulle, $\Delta\rho$ la différence de masse volumique entre le fluide et le gaz, g l'accélération de pesanteur et S la surface de la bulle.

La condition de migration s'écrit alors :

$$\sigma_a > \sigma_y \Longrightarrow \frac{\Delta\rho g R}{3} > \sigma_y \Longrightarrow R > \frac{3\sigma_y}{\Delta\rho g} \tag{5.73}$$

De manière analogue au cas de la croissance décrit par un modèle de Bingham modifié, nous allons pouvoir déterminer la vitesse de remontée d'une bulle en considérant que la contrainte dont elle dispose pour migrer vaut $\sigma_a - \sigma_y$. Pour relier la contrainte engendrée par poussée d'Archimède à la vitesse de migration d'une bulle, nous considérons que le fluide s'écoule avec une viscosité constante au-delà du seuil : $\sigma_a - \sigma_y = \eta\dot{\gamma}_a$. Pour $\sigma_a > \sigma_y$, le taux de cisaillement $\dot{\gamma}_a$ du fluide est défini comme étant le rapport entre la vitesse de la bulle V_z et son rayon R. On peut en déduire la vitesse de migration d'une bulle dans un fluide à seuil :

$$\frac{V_z}{R} = \dot{\gamma}_a \tag{5.74}$$

$$\Rightarrow \quad \frac{V_z}{R} = \frac{\sigma_a - \sigma_y}{\eta} \tag{5.75}$$

$$\Rightarrow \quad V_z = R\frac{\frac{\Delta\rho g R}{3} - \sigma_y}{\eta} \tag{5.76}$$

$$\Rightarrow \quad V_z = \frac{\Delta\rho g R^2 - 3R\sigma_y}{3\eta} \tag{5.77}$$

Notons que, pour un seuil nul ($\sigma_y = 0$), cette expression de la vitesse est bien la même que l'expression de la vitesse de migration d'une bulle dans un fluide newtonien, selon le régime de Hadamard-Rybczynski [51, 6] :

$$V_z = \frac{(\rho_{bitume} - \rho_{gi})\, gR^2}{3\eta} \tag{5.78}$$

5.3.2 Comportement d'une population

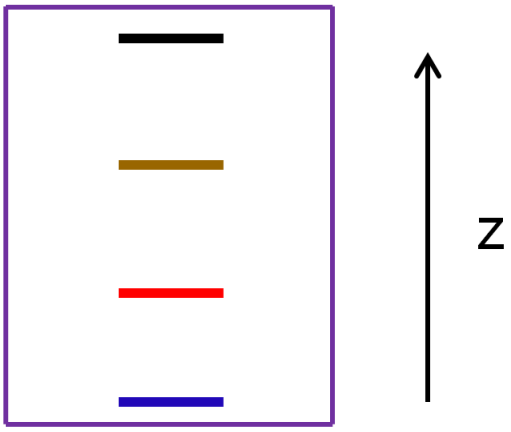


FIGURE 5.10 – Légende des couleurs représentant les populations des différentes hauteurs dans le pot

Nous allons, dans cette partie, présenter qualitativement l'effet d'un seuil sur l'évolution d'une population dans un fluide dont les paramètres permettent d'observer des phénomènes intéressants. Pour cela, nous prenons une valeur du seuil égale à 2 Pa, un module élastique du fluide de 10^9 Pa, une viscosité de 1000 Pa s, une masse volumique de 1000 kg m^{-3}, l'ensemble des autres paramètres étant identiques aux simulations de la section précédente.

Les figures 5.11 à 5.14 représentent l'évolution au cours du temps d'une population de bulles pour 4 hauteurs différentes dans un pot de 8 cm de hauteur. La figure 5.10 permet de situer la hauteur relative dans le pot des 4 distributions représentées. Les barres verticales rouges représentent les rayons limites de croissance et de décroissance des bulles, tandis que la barre verticale noire représente le rayon minimum pour que les bulles puissent migrer. Il est à noter que, dans un souci de clarté des graphes, nous n'avons représenté les rayons limites de croissance et décroissance que d'une seule des 4 distributions. En réalité, ceux-ci varient légèrement d'une hauteur à une autre dès lors que certaines bulles ont commencé à migrer. Cela est la conséquence du fait que le nombre de bulles va varier en fonction de la hauteur, ainsi que le pompage de gaz et donc la concentration n'aura pas la même évolution dans tout le pot.

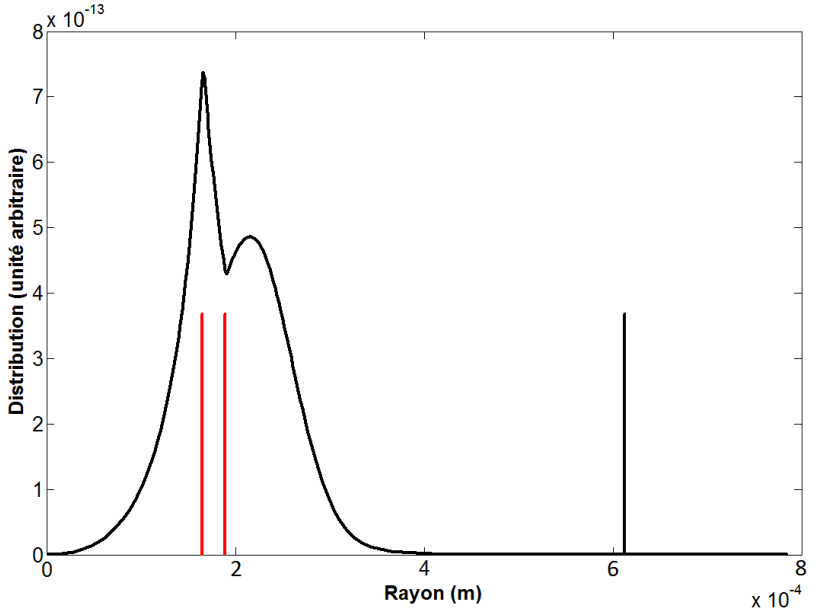


FIGURE 5.11 – Représentation d'une population de bulles pour différentes hauteurs dans le fût au bout de 1 jour

Au début de la simulation (figure 5.11), nous constatons que les bulles sont trop petites pour pouvoir se mouvoir et nous observons l'effet du seuil qui a tendance à scinder la population en deux. Nous constatons également que les distributions des 4 hauteurs sont superposées. Elles subissent la même évolution car, pour l'instant, aucune migration n'est possible. Ensuite, lorsque la partie de la population dont le rayon est suffisant pour croître atteint la taille limite de migration (figure 5.12), on constate des différences entre les distributions des 4 hauteurs. En effet, la migration a pour conséquence de faire diminuer le nombre de bulles en bas du pot et de faire augmenter le nombre de bulles en haut.

Puis, après un certain temps (figure 5.13), la quasi-totalité des bulles a fini par migrer jusqu'en haut du pot et est évacuée. A ce stade, le nombre de bulles présentant un rayon suffisant pour croître devient donc très faible. Le pompage de la matrice par les bulles devient alors inférieur à l'apport par radiolyse, ce qui a pour conséquence de faire remonter le niveau de sursaturation. Or, cette augmentation de la concentration va décaler les rayons limites de croissance et de décroissance des bulles vers des rayons plus petits, ce qui va libérer la partie de la population qui était initialement piégée. Ces bulles vont à leur tour pouvoir croître, atteindre la taille minimale (figure 5.14) pour migrer et ainsi sortir du pot.

Pour les paramètres matériaux choisis lors de cette simulation, l'évacuation de la totalité des bulles est effectuée en deux salves. Néanmoins, la valeur du seuil va pouvoir modifier le nombre de salves d'évacuation, comme nous allons le voir dans la section suivante.

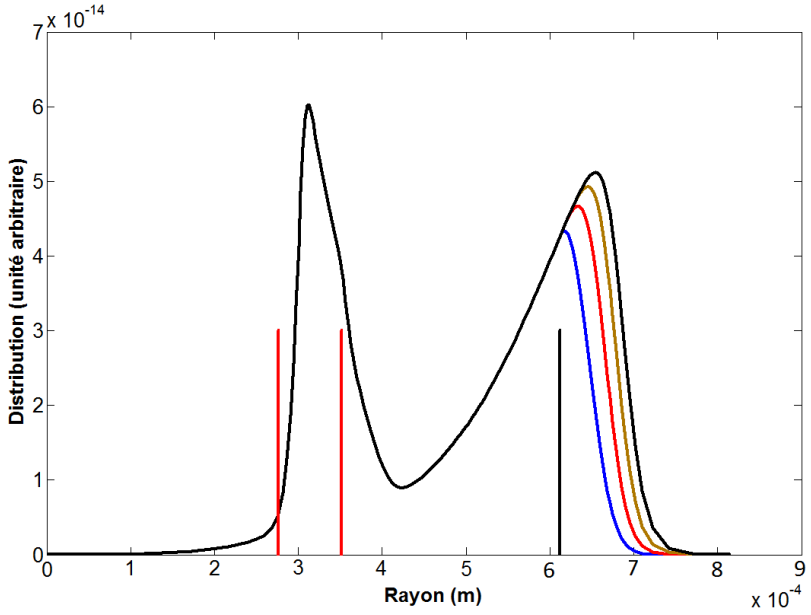


FIGURE 5.12 – Représentation d'une population de bulles pour différentes hauteurs dans le fût au bout de 26 jours

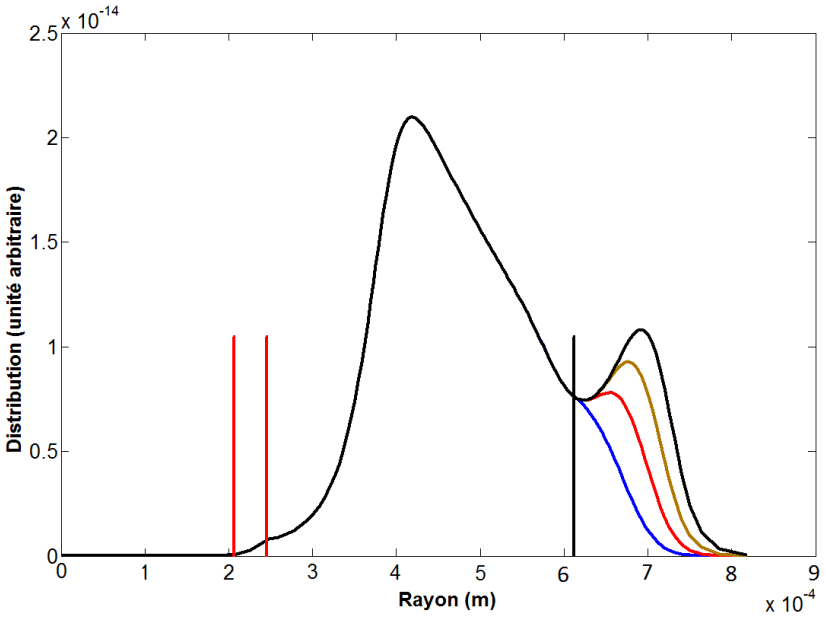


FIGURE 5.13 – Représentation d'une population de bulles pour différentes hauteurs dans le fût au bout de 35 jours

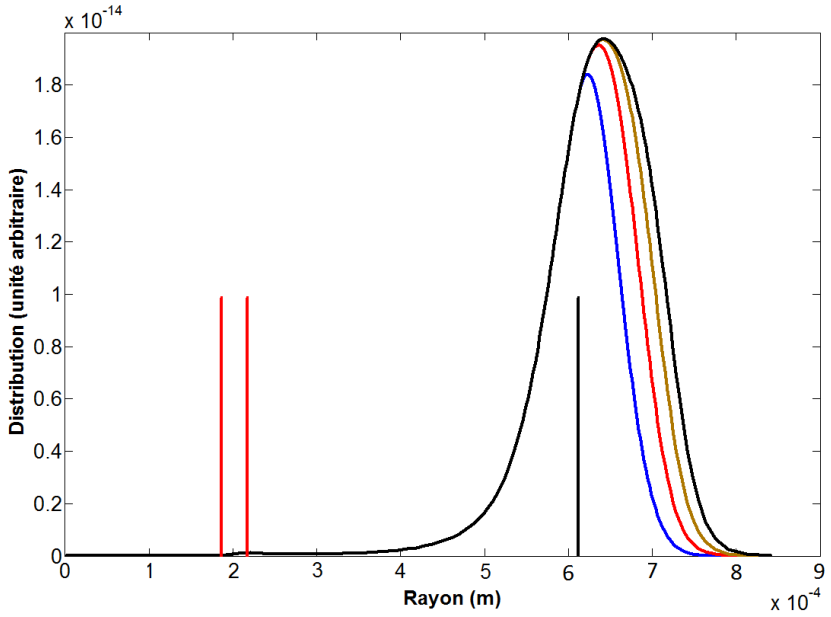


FIGURE 5.14 – Représentation d'une population de bulles pour différentes hauteurs dans le fût au bout de 41 jours

5.3.3 Suivi du débit de gaz sortant et du gonflement

Nous allons, dans cette dernière partie, présenter qualitativement l'effet d'un seuil sur le gonflement ainsi que sur le débit de gaz évacué par migration des bulles. Les paramètres matériaux des cas représentés sur les figures 5.15 à 5.17 sont identiques à ceux de la section précédente, à l'exception du seuil d'écoulement que l'on a fait varier. Ainsi, la figure 5.15 représente l'évolution du gonflement et du débit de gaz sortant du pot pour un fluide newtonien, la figure 5.16 représente un fluide à seuil de valeur 2 Pa et la figure 5.17 un fluide à seuil de valeur 4 Pa.

Étant donné qu'aucune germination n'est prise en compte, les cas présentés ici correspondant à la réponse impulsionnelle du modèle de gonflement pour un fluide à seuil. La figure 5.15 nous montre que, dans le cas d'un fluide newtonien, le gonflement augmente jusqu'à une valeur maximale et diminue jusqu'à 0. L'évacuation du gaz est effectuée en une seule fois. La figure 5.16 nous montre que l'évacuation de gaz dans le cas d'un fluide à seuil de valeur 2 Pa est conforme à l'évolution de la population observée dans la section précédente, c'est-à-dire en deux salves.

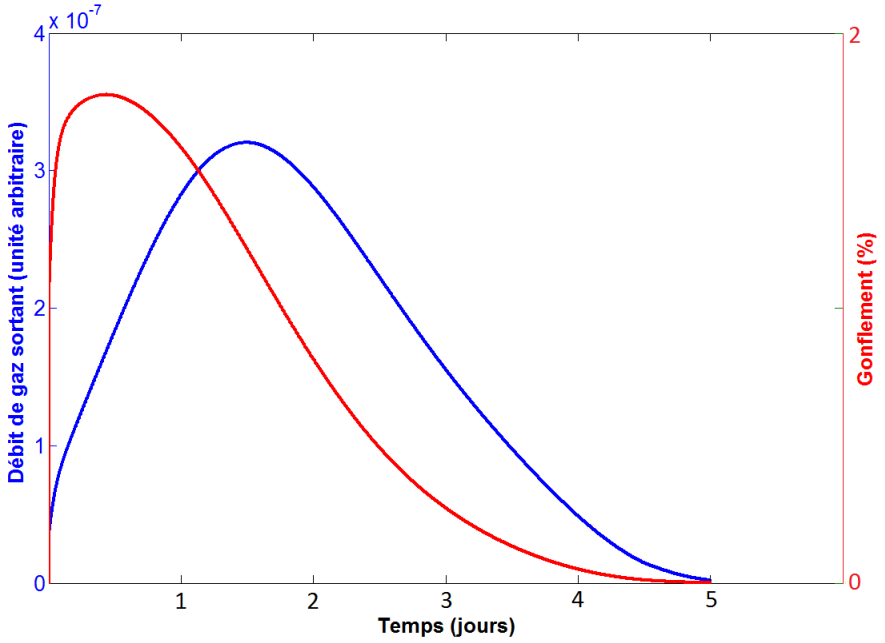


FIGURE 5.15 – Évolution du débit de gaz sortant et du gonflement en fonction du temps pour un seuil nul

Pour des valeurs plus élevées du seuil d'écoulement (un cas de fluide à seuil de valeur 4 Pa est représenté sur la figure 5.17), l'évacuation de la totalité des bulles peut s'effectuer en plus de deux salves. L'évolution du gonflement global du pot s'éloigne alors du cas du fluide newtonien.

On constate aussi, et surtout, que la valeur maximale du gonflement est fortement impactée par la présence d'un seuil d'écoulement. Cela est principalement dû au fait que les bulles

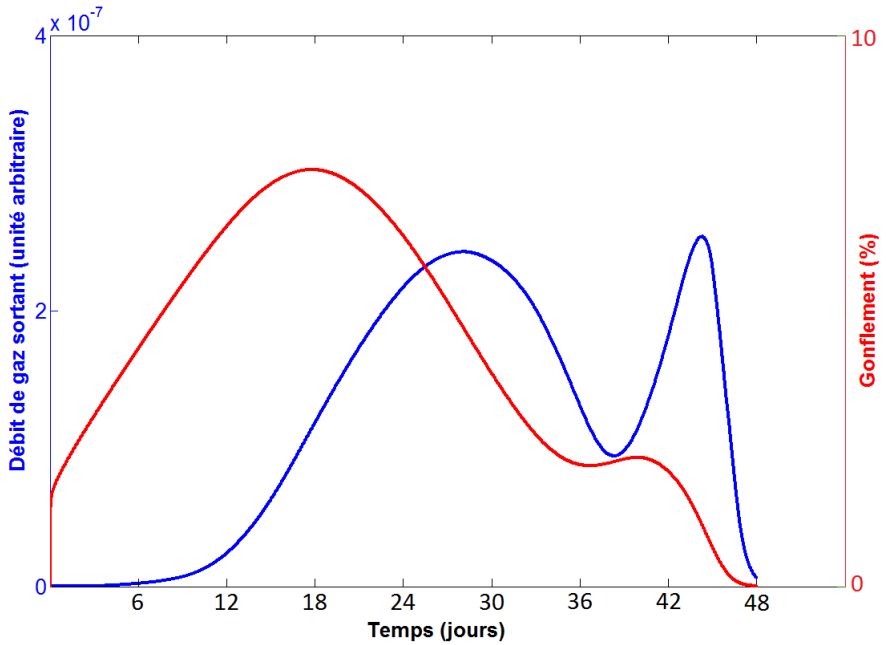


FIGURE 5.16 – Évolution du débit de gaz sortant et du gonflement en fonction du temps pour un seuil σ_y=2 Pa

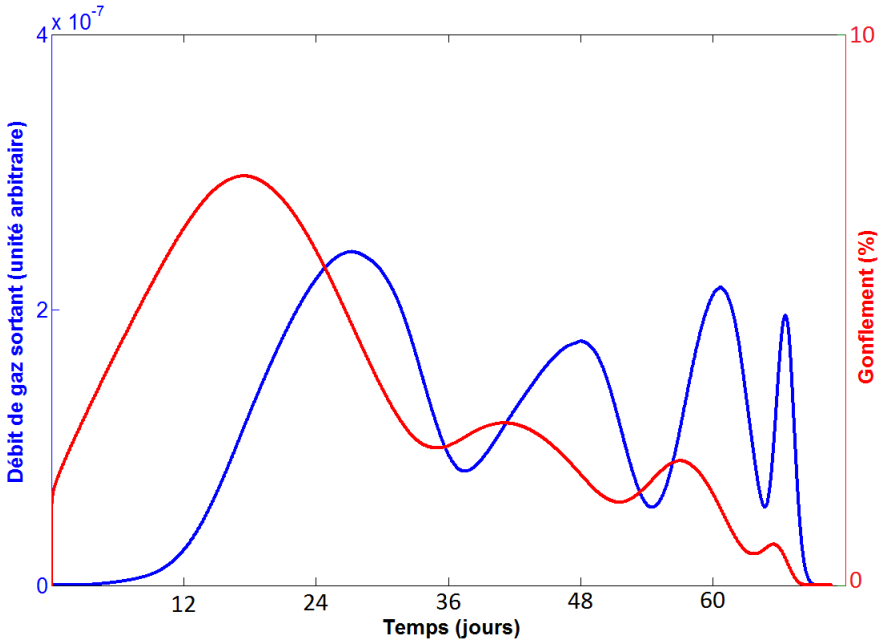


FIGURE 5.17 – Évolution du débit de gaz sortant et du gonflement en fonction du temps pour un seuil σ_y=4 Pa

doivent atteindre une taille minimale avant de migrer. Elles restent ainsi plus longtemps dans le pot à croître, ce qui se manifeste par un gonflement accru. Dans le cas d'un fluide newtonien, les bulles peuvent se mouvoir quelle que soit leur taille, ainsi leur évacuation est beaucoup plus rapide (notons la différence d'échelle de temps entre la figure 5.15 et les

figures 5.16 et 5.17) et le gonflement moindre.

5.4 Conclusion du chapitre

La croissance d'une bulle dans un fluide à seuil décrit par un modèle de Bingham modifié a été traitée dans ce chapitre. Il a ainsi été admis que le fluide pouvait s'écouler avec une viscosité constante au-delà d'une certaine contrainte (région proche de la bulle en croissance) et qu'il subissait une déformation élastique en-deçà du seuil (région loin de la bulle). A la différence du cas d'un fluide newtonien incompressible, la pression dans le fluide autour de la bulle n'est pas constante. De plus, selon sa taille et la valeur du seuil, une bulle peut soit croître, soit décroître, soit être figée.

L'étude de l'évolution d'une population de bulle sans prise en compte de la migration a mis en évidence le fait que le seuil puisse scinder la population en deux parties. Les bulles dont la taille est supérieure à une taille critique croissent tandis que les bulles plus petites sont figées. Ce clivage est d'autant plus important que la valeur du seuil est élevé. De plus, lorsque la migration des bulles dans un fluide à seuil est prise en compte, l'évacuation du gaz par se fait par à-coups.

En dessous d'une certaine valeur (environ 1 Pa), l'impact du seuil est négligeable et la forme globale de la population reste proche du cas d'un fluide newtonien. Les enrobés bitumineux pouvant présenter des seuils de l'ordre de 30 Pa (estimation à partir d'extrapolations), ils ne peuvent donc pas être considérés newtoniens. Une estimation pertinente du gonflement nécessiterait ainsi une étude expérimentale approfondie du seuil d'écoulement d'enrobés bitumineux.

Conclusion et perspectives

L'objectif de ce travail était de prédire le gonflement radiolytique de fûts d'enrobés bitumineux contenant des déchets radioactifs en conditions d'entreposage, de transport et de stockage. L'incorporation de radionucléides dans du bitume provoque en effet sa radiolyse et du gaz (majoritairement du dihydrogène) est ainsi généré au sein du matériau. Ce gaz est solubilisé dans la matrice jusqu'à ce que sa concentration atteigne une valeur limite, la saturation, au-delà de laquelle un mécanisme de germination a lieu : des bulles sont formées. Elles vont par la suite croître grâce à l'apport de gaz par radiolyse et migrer sous l'effet de la poussée d'Archimède. Le gonflement du matériau résulte alors de la compétition entre création et évacuation de gaz. Un modèle a été élaboré pour décrire l'évolution d'une population de bulles. Sa résolution analytique n'étant pas possible, un code numérique a été développé.

La première étape de ce travail a été de comprendre les mécanismes mis en jeu. Pour cela, une analyse d'images, obtenues par microtomographie aux rayons X, d'échantillons d'enrobés bitumineux soumis à des rayonnements externes (pour deux débits de dose supérieurs au cas réel) a été menée. Elle a permis d'observer l'influence du terme source (vitesse d'apport de gaz) sur la population de bulles. Ainsi, une augmentation de ce dernier semble aboutir à une population de bulles chaotique. On constate que les bulles sont de formes et de tailles très hétéroclites, contrairement au cas du débit de dose plus faible où les bulles sont sphériques et de taille plus homogène. Le terme source d'un cas réel étant inférieur à celui des échantillons analysés, l'hypothèse est donc faite que les bulles sont sphériques.

Des observations par microscopie électronique à balayage environnementale ont également été réalisées. Elles ont permis d'étudier la répartition des sels radioactifs dans la matrice de bitume. Ceux-ci sont regroupés en agglomérats répartis de manière homogène dans tout le volume du matériau. La petite taille des agglomérats (au regard de la taille des bulles considérées) ainsi que leur dispersion fine dans la matrice ont permis d'émettre des hypothèses pour l'élaboration du modèle. L'enrobé est ainsi considéré comme étant un continuum (pas de prise en compte des sels) et l'irradiation du matériau est supposée homogène en volume (donc l'apport de gaz par terme source aussi).

A partir de ces observations sur le matériau réel et de la physique mise en jeu, un modèle d'évolution d'une population de bulles a été mis en place en considérant un fluide newtonien dont la rhéologie évolue au cours du temps (conséquence de l'interaction rayonnement-matière). Nous avons dans un premier temps fait l'hypothèse que le fluide modélisé est newtonien, suite aux résultats obtenus par Mouazen [5] sur la caractérisation rhéologique

d'enrobés bitumineux soumis à des rayonnements externes. Le modèle établi repose sur trois équations couplées : une équation de continuité portant sur le nombre de bulles, une équation de bilan de masse et une équation donnant la vitesse de croissance des bulles.

La résolution du modèle a été réalisée à l'aide d'un code numérique que l'on a voulu flexible et utilisable dans une large gamme de géométries. Pour cela, des schémas numériques robustes ont été choisis. Des adaptations de maillages ont également été utilisées pour améliorer la précision des résultats. Le problème considéré s'étendant sur plusieurs échelles de temps, une adaptation du pas de temps a été mise en place. Elle permet de décrire des dynamiques rapides si besoin, tout en simulant de longues périodes dans des temps de calcul raisonnables (quelques heures).

Les études de Mouazen [5] ont mis en évidence la présence d'un seuil d'écoulement dans le bitume. Bien que sa valeur soit faible sur des échantillons préparés en laboratoire (le bitume est considéré en première approximation comme newtonien), son influence sur la croissance d'une bulle ainsi que sur l'évolution d'une population de bulles a été étudiée. En décrivant le fluide par un modèle de Bingham modifié, il a ainsi été montré qu'un seuil d'écoulement peut scinder une population de bulles en deux parties, pourvu que sa valeur soit suffisamment élevée. Une partie des bulles (dont la taille est supérieure à une valeur critique) va croître et migrer, tandis que l'autre partie des bulles est figée (leur vitesse de croissance est nulle). La conséquence de cela est une évacuation du gaz par migration en plusieurs salves. Des oscillations du gonflement du matériau sont alors observées. La valeur du seuil d'écoulement dans un enrobé bitumineux à température ambiante n'est pas connue mais des extrapolations semblent montrer que cette valeur est suffisamment élevée pour impacter l'évolution d'une population ainsi que le gonflement du matériau. Pour cela, une caractérisation du seuil d'écoulement d'enrobés est nécessaire pour alimenter le modèle élaboré dans ce travail et améliorer les résultats des simulations numériques.

L'influence des paramètres physiques sur le gonflement a également été étudiée à l'aide de simulations numériques. Il en ressort que le gonflement est d'autant plus important que la viscosité, le terme source et la hauteur du récipient sont élevés. En revanche, une augmentation du coefficient de diffusion conduit à un gonflement moins important. L'influence de la viscosité était attendue car elle joue sur l'évacuation de gaz : plus la viscosité est élevée et plus la vitesse des bulles est faible. Le terme source étant à l'origine de la création de gaz, il est également logique que son augmentation conduise à un gonflement plus important (sans terme source il n'y aurait aucun gonflement). L'influence de la hauteur du récipient est liée au temps d'établissement d'un régime stationnaire : celui est plus long lorsque la hauteur est plus élevée. Quant au coefficient de diffusion, son augmentation accélère le mûrissement et la croissance des bulles, ce qui a pour conséquence d'améliorer l'évacuation de gaz, d'où un gonflement moindre.

Les résultats numériques obtenus dans ce travail ont permis d'observer certaines tendances du comportement d'une population de bulles dans un enrobé irradié. Néanmoins, une question demeure quant à la phénoménologie liée à la germination. Deux approches ont ici été considérées pour modéliser ce mécanisme. La première consiste à faire germer des bulles lorsque la saturation atteint une valeur critique, tandis que la seconde consiste à introduire

de nouvelles bulles dès lors que la concentration augmente. Pour ces deux modélisations, le gonflement présente une grande sensibilité au choix des paramètres de germination qui ne peut à l'heure actuelle pas être guidé par des résultats expérimentaux. En effet, la taille à laquelle les bulles apparaissent n'a pas pu être déterminée expérimentalement et demeure inconnue.

La germination de bulles dans le bitume est très difficile à appréhender expérimentalement, notamment du fait que le bitume ne soit pas transparent. Les conditions idéales pour la caractériser seraient de suivre *in situ* par microtomographie l'évolution d'un enrobé bitumineux soumis à des rayonnements externes. Il faudrait néanmoins avoir une résolution d'imagerie inférieure au µm, ce qui demeure illusoire. De plus, il faudrait que ce dispositif soit à même de résister aux rayonnements auxquel il est soumis, ce qui constitue un deuxième obstacle majeur. Une seconde possibilité, néanmoins moins précise, serait de suivre l'évolution du gonflement de l'échantillon par caméra. Dès lors qu'un gonflement serait constaté, le matériau serait analysé par microtomographie pour observer la répartition et la taille des premiers germes créés.

La comparaison de résultats obtenus numériquement avec des résultats expérimentaux montre que le code développé dans ce travail est minorant en terme de gonflement. De plus, un pic initial de gonflement, observé numériquement, n'a jamais été constaté expérimentalement. Plusieurs hypothèses considérées pour élaborer le modèle présenté ici seraient à reconsidérer pour améliorer les prédictions de gonflement et justifient que les résultats numériques ne soient pas en accord avec les résultats expérimentaux :

- Le modèle repose sur une hypothèse de régime dilué. Elle est valable pour de faibles fractions volumiques de bulles mais ne l'est plus dans le cas de forts débits de dose. Or, ces cas constituent le seul point de comparaison avec des données expérimentales. Pour de forts débits de dose, les gonflements constatés sont au minimum de 10% et le système nécessiterait alors d'être décrit par un régime semi-dilué, voire même concentré.

- La vitesse de migration des bulles a été prise en considérant une bulle isolée, ce qui reste vrai en régime dilué mais non en régime semi-dilué ou concentré. En effet, pour des fractions volumiques de bulles plus importantes, les bulles vont être suffisamment proches les unes des autres pour que leur migration soit influencée par celle des autres. Il a ainsi été montré [32] qu'une bulle en mouvement induit un sillage dans le fluide après son passage. Si une autre bulle se trouve dans ce sillage, elle aura une migration facilitée et sa vitesse sera alors supérieure à celle prédite par le régime de Hadamard-Rybczynski [51, 6]. Cela augmentera l'évacuation de gaz et diminuera ainsi le gonflement du matériau.

- La loi d'évolution de la viscosité des enrobés bitumineux en fonction de la dose intégrée a été établie pour un débit de dose de 4500 Gy/h. Or, le domaine de validité de notre modèle ne nous permettrait de comparer les résultats numériques et expérimentaux que pour un débit de dose de 100 Gy/h et des études en cours tendent à montrer que l'évolution de la viscosité de l'enrobé en fonction de la dose reçue est fonction du débit de dose. Une diminution du débit de dose semble conduire à une viscosité plus élevée à dose

intégrée équivalente. De ce fait, la loi de vieillissement considérée jusqu'à présent pour les simulations numériques ne permet pas de rendre compte du comportement réel des enrobés.

- En cohérence avec l'hypothèse de régime dilué, la coalescence des bulles n'a pas été prise en compte. L'observation par microtomographie d'enrobés irradiés à forts débits de dose montre cependant que la coalescence de bulles a lieu et il a été montré qu'elle favorise l'évacuation de gaz par convection. Considérer la coalescence conduirait donc à amoindrir le gonflement obtenu numériquement. Cela est d'autant plus vrai que le gonflement est important, et donc que le débit de dose est élevé. En effet, plus la fraction volumique de bulles est élevée, plus la probabilité que des bulles se rencontrent et fusionnent est élevée. En outre, prendre la coalescence en compte pourrait estomper, voire gommer, le premier pic de gonflement en accélérant la mise en place du régime stationnaire.

Pour ce qui est du pic initial de gonflement, le fait qu'il n'ait jamais été observé expérimentalement ne prouve pas qu'il est inexistant. En effet, le suivi du gonflement des enrobés soumis à des rayonnements externes n'est pas aisé et une dizaine de mesures par an seulement peut être réalisée. En outre, il s'agit d'une mesure visuelle qui n'est pas facilitée par le fait que le récipient soit en verre. Ce dernier a en effet la particularité de brunir lorsqu'il est exposé à des rayonnements, rendant la mesure de gonflement imprécise. Un dispositif expérimental de détection de la hauteur du matériau dans le récipient serait nécessaire pour améliorer la précision des résultats.

Perspectives

Des observations *in situ* de germination et de coalescence seraient un plus pour comprendre ces phénomènes et les modéliser pertinemment. Dans ce but, la conception d'un dispositif expérimental a été étudiée au cours de ce travail. Les difficultés rencontrées lors de sa mise au point et des délais de mise en place et de validation ont décalé l'exploitation des premiers résultats. Ceci étant, quelques résultats préliminaires ont tout de même pu être obtenus.

Le but de ce dispositif est l'observation du comportement de bulles dans un fluide. Les deux contraintes principales étaient de trouver un fluide transparent et dont les propriétés rhéologiques induisent des échelles de temps raisonnables (beaucoup plus courtes que dans un bitume). Pour cela, notre choix s'est porté sur un polydiméthylsiloxane (PDMS) BLUESIL ® 47 V 300 000 de viscosité 300 Pa s. Cette huile silicone a l'avantage d'être parfaitement transparente, d'avoir un comportement newtonien sur une très large gamme de déformations et de taux de cisaillement et d'être inerte chimiquement.

Le gaz choisi ici pour générer des bulles est de l'hélium car la taille de sa molécule est proche de celle du dihydrogène et car son utilisation ne présente pas de risque particulier (contrairement au dihydrogène qui, lui, est explosif). Le principe expérimental est de saturer le fluide en gaz en lui appliquant une pression donnée. Cette mise sous pression est maintenue pendant un temps suffisamment long pour que le gaz ait le temps de diffuser

dans le matériau et que la concentration soit homogène en volume. Par la suite, nous faisons diminuer lentement la pression au-dessus du fluide pour simuler un terme source de gaz. En effet, la concentration à saturation étant proportionnelle à la pression appliquée au fluide (loi de Henry), une diminution de la pression va entraîner une diminution de la concentration à saturation. La concentration en gaz étant toujours la même qu'au début de l'expérience (la diffusion étant lente devant la vitesse de décompression), elle va se trouver être supérieure à la concentration à saturation et l'on va ainsi augmenter la sursaturation dans le fluide. Passée une certaine valeur de sursaturation, il est attendu que la germination de bulles ait lieu.

FIGURE 5.18 – Germination de bulles d'hélium sur un agglomérat de perlite dans du polydiméthylsiloxane

En pratique, la germination n'a lieu que sur les parois du récipient (à cause de la présence d'aspérités) et non en volume dans le fluide. Pour pallier cet inconvénient, un agent germinant a été introduit. Plusieurs matériaux ont été testés (notamment du sable et des sels de sulfate de baryum, mais sans résultat), dont de la perlite (roche volcanique silicieuse) réduite à l'état de poudre. Celle-ci constitue des sites de germination privilégiés (figure 5.18). Les observations faites à partir de cet agent germinant sont pertinentes en vue d'une comparaison avec les enrobés bitumineux car les sels incorporés dans le bitume contiennent de la perlite. De plus, la poudre de perlite utilisée étant de très faible granulométrie, sa sédimentation est très lente et ne pose pas de problème pour les échelles de temps envisagées avec ce dispositif expérimental (de quelques heures à quelques jours).

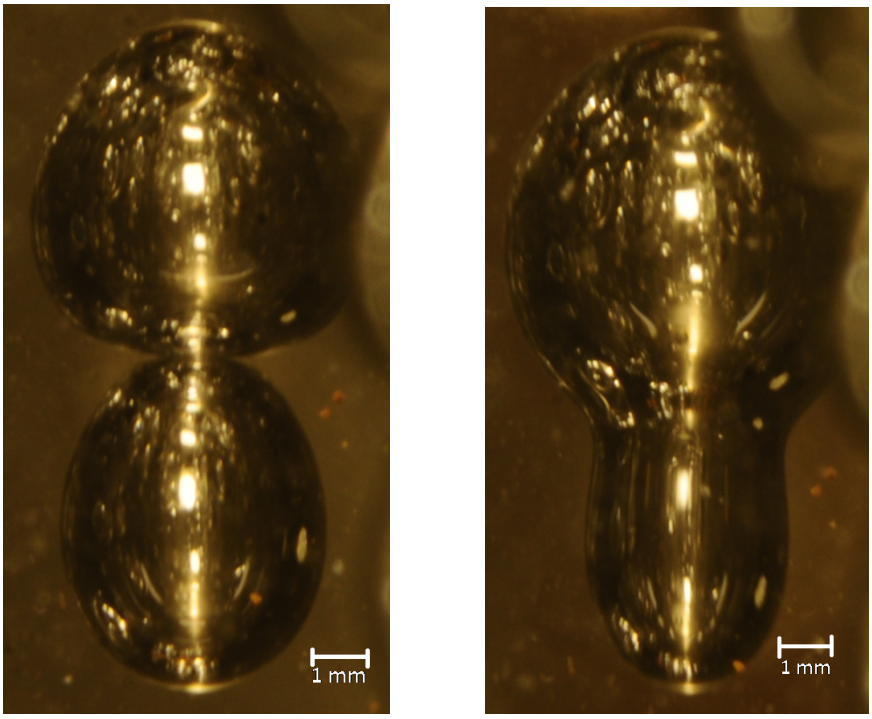
FIGURE 5.19 – Dispositif expérimental pour l'observation de bulles de gaz dans un fluide

Le récipient choisi pour réaliser le dispositif expérimental est une cellule cylindrique (de 3,8 litres de contenance) hermétique en acier pouvant contenir des pressions jusqu'à 130 bar (figure 5.19). Elle est munie de deux hublots diamétralement opposés permettant l'éclairage et l'observation du matériau. Elle est dotée de plusieurs entrées permettant de faire un suivi de la pression, de faire entrer le gaz sous pression et également de connecter une vanne pilotée électroniquement pour contrôler la dépression de l'enceinte. Le pilotage électronique de la décompression permet de contrôler la vitesse de décroissance de la concentration à saturation et, par conséquent, l'évolution de la sursaturation. On peut ainsi se placer dans les mêmes conditions que pour un terme source induit par radiolyse.

L'acquisition d'images au cours du temps par caméra (ou appareil photo) permet de suivre l'évolution des bulles présentes dans le fluide. Les différents mécanismes d'évolution d'une population de bulles peuvent alors être appréhendés. Néanmoins, une précaution est nécessaire quant à la caractérisation de la croissance des bulles. En effet, le fait de diminuer la pression en regard du fluide va faire croître les bulles par simple dilatation mécanique (nous entendons par là qu'aucune variation de quantité de gaz dans la bulle n'est impliquée dans cette croissance). Il faut donc tenir compte de cela (notamment grâce au suivi de la pression dans l'enceinte) pour comparer la croissance des bulles constatée ici avec le cas d'un terme source par radiolyse. En reprenant le formalisme des équations présentées dans le chapitre 2, nous avons ici une augmentation de la sursaturation ε conjointement à une diminution de la pression extérieure p_∞.

Le code de gonflement développé dans ce travail étant flexible en termes de géométrie et de valeurs de paramètres physiques d'entrée, il sera possible de faire des comparaisons entre le gonflement observé expérimentalement et les résultats obtenus numériquement.

Ces données permettront notamment d'apporter des connaissances sur le mécanisme de germination. Une analyse plus fine de la population est également envisageable à partir d'images prises dans plusieurs sections du fluide. Cela est réalisable en prenant une profondeur de champ très faible (de sorte à obtenir une sorte de coupe du fluide, de manière analogue à de la microtomographie) et en faisant varier la distance focale de l'objectif pour obtenir des coupes successives du fluide. L'analyse d'une telle succession de coupes pourrait ensuite être faite à l'aide du code d'analyse d'images de microtomographie présenté au chapitre 1. Cette étude nécessite cependant un travail important de mise au point du système d'acquisition d'images.



(a) 2 bulles avant coalescence

(b) Bulle résultant de la coalescence

FIGURE 5.20 – Coalescence de 2 bulles d'hélium dans du Polydiméthylsiloxane

La quantification de l'impact de la coalescence serait un autre objectif de ce dispositif expérimental. Il est en effet possible de maîtriser les emplacements sur lesquels peuvent naître des bulles en insérant ponctuellement de la perlite ainsi que de maîtriser leur taille en jouant sur la pression de gaz en regard du fluide. Nous avons donc une certaine maîtrise sur les conditions initiales et nous pouvons donc les faire varier pour observer leur influence sur la coalescence. Néanmoins, il est déjà possible d'observer la coalescence, dont le mécanisme est largement décrit dans la littérature [69, 70, 29], et d'en tirer de précieuses informations en laissant le système évoluer librement. Nous avons effectivement pu observer le phénomène de coalescence à de nombreuses reprises et dans des conditions assez variées (dessus-dessous, côte-à-côte, en diagonale, petite et grosse, taille similaire), comme le montrent respectivement les figures 5.20 et 5.21. Cela laisse penser que la coalescence

n'est pas un phénomène sporadique, mais qu'il joue bien un rôle important. La prendre en compte dans le modèle de gonflement semble être primordial en vue d'améliorer la précision des résultats obtenus.

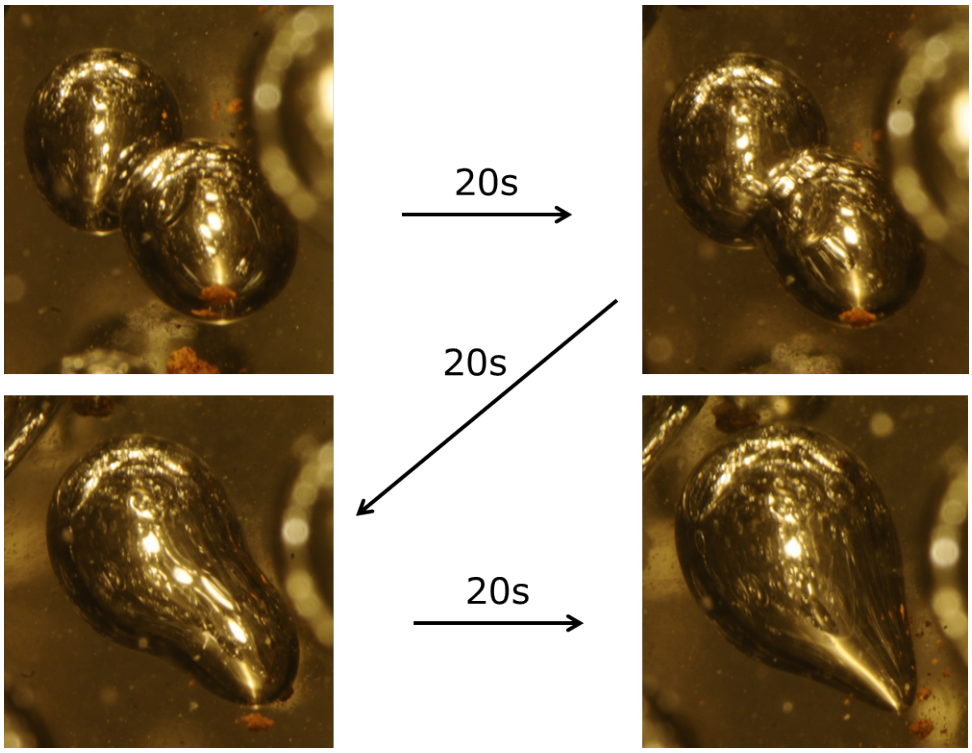


FIGURE 5.21 – Images successives prises à 20 s d'intervalle représentant la coalescence diagonale de 2 bulles d'hélium dans du Polydiméthylsiloxane

Les observations faites à l'aide de ce dispositif expérimental mettent également en évidence l'influence d'une population de bulles sur la migration. En effet, pour une bulle isolée dans un fluide au repos, la vitesse de migration par poussée d'Archimède est proportionnelle au carré du rayon de la bulle. Or, lorsqu'une bulle est en mouvement, elle laisse derrière elle un sillage [32, 71, 72] et si une autre bulle de taille équivalente se trouve dans ce sillage, elle rattrape la première [73]. Cette accélération de la migration est encore plus importante dans le cas d'un front de bulles qui migrent, ce qui est le cas dans les enrobés irradiés.

Pour conclure, les bases d'un modèle de gonflement d'enrobés bitumineux sous radiolyse ont été posées et un outil numérique de résolution a été développé. Les résultats obtenus numériquement ont été comparés à des résultats expérimentaux sur matériaux préparés en laboratoire. En l'état actuel des choses, les résultats numériques sont minorants en termes de gonflement et des pistes d'amélioration ont été mises en évidence. Parmi elles figurent notamment la prise en compte de la coalescence, la caractérisation du seuil d'écoulement d'enrobés bitumineux à température ambiante et des investigations expérimentales sur la phénoménologie de germination. Par ailleurs, le dispositif expérimental mis en place durant ce travail permettra de valider les mécanismes mis en jeu lors de l'évolution d'une

population de bulles et, réciproquement, les résultats numériques permettront de dimensionner les paramètres opératoires des expériences.

Bibliographie

[1] ANDRA. http ://www.andra.fr/pages/fr/menu1/les-dechets-radioactifs/comment-sont-classes-les-dechets-radioactifs-r-9.html, 2014.

[2] S. Sarrade, S. Faure, B. Fournel, F. Lemont. Les procédés de décontamination et de traitement des effluents et déchets technologiques. Technical report, CEA.

[3] ANDRA. Le stockage profond à l'épreuve de la réversibilité, http ://www.cigéo.com/, 2014.

[4] C. Bourgeois. Interaction particules-matière - Théorie. *Techniques de l'Ingenieur*, 1998.

[5] M. Mouazen. Evolution des propriétés rhéologiques des enrobés bitume, vers une loi vieillissement/viscosité. *Thèse de doctorat, MINES ParisTech - Centre de mise en forme des matériaux*, 2011.

[6] W. Rybczynski. Über die fortschreitende Bewegung einer flüssigen Kugel in einem zähen Medium. *Bull. Acad. Sci. Cracovi, A.*, 1 :40–46, 1911.

[7] I. M. Lifshitz, V. V. Slyozov. The kinetics of precipitation from supersaturated solid solutions. *J. Phys. Chem. Solids*, 19(1) :35–50, 1961.

[8] V. Moncada. Rapport interne, CEA Marcoule, Direction de l'Energie Nucléaire, Service des Procédés de Décontamination et d'Enrobage des Déchets. 2006.

[9] M. Mouazen, A. Poulesquen, F. Bart, B. Vergnes. Effect of gamma irradiation on nuclear bituminized waste products (BWP) : X-ray microtomography and rheological characterization. *J. Nucl. Mat.*, 419(1-3) :24–31, 2011.

[10] C. Thiery, J.L. Gerstenmayer. Tomographie à rayons X. *Techniques de l'Ingenieur*, pages 1–24.

[11] D. Hukic. Reconstruction exacte et statistique de microstructures numériques à partir d'images expérimentales dans un formalisme level-set. Raport interne, Ecole des Mines de Paris, Sophia Antipolis. 2011.

[12] C. Pichon. Inhibition de la production d'hydrogène radiolytique dans les déchets nucléaires de type « enrobés bitumineux » : étude de l'interaction entre l'hydrogène et l'hydroxosulfure de cobalt. *Thèse de doctorat, Ecole Nationale Superieure des Mines de Saint-Etienne*, 2006.

[13] D. Chartier, S. Parraud, V. Blanc, P. Giavarini, T. Zanifé, F. Bouyer. Experimental use of cobalt sulfide to trap hydrogen in bituminized waste packages to prevent the matrix swelling. In *Proceedings of Global 2009*, pages 356–365, 2009.

[14] D. Chartier, C. Joussot-Dubien, D. Quinton, F. Bernard, C. Riglet-Martial, E. Excoffier, V. Dauvois, E. Sciora, F. Bouyer. Evidence for H_2S gas as an intermediate species in the reaction mechanism of trapping hydrogen by cobalt disulfide. *Intern. J. Hydr. Energy*, 36(19) :12121–12129, 2011.

[15] D. Chartier, C. Joussot-Dubien, C. Pighini, E. Sciora, F. Bouyer. Hydrogen trapping : Synergetic effects of inorganic additives with cobalt sulfide absorbers and reactivity of cobalt polysulfide. *Intern. J. Hydr. Energy*, 37(18) :13594–13601, 2012.

[16] P. Bernat. Etude du comportement des enrobes bitumineux sous irradiation gamma, influence des constituants provenant du procédé STE3 de décontamination des effluents liquides. *Thèse de doctorat, Université René Descartes, Paris*, 1994.

[17] C. Pichon, M. Pijolat, N. Millard-Pinard, A. Chevarier, P. Leverd. Etude de l'interaction entre l'hydroxosulfure de cobalt et l'hydrogène. In *XIe Congrès de la Société Française de Génie des Procédés. Des réponses industrielles pour une société en mutation*, pages 1–9, Saint-Etienne, 2007.

[18] A. Akou. Diffusion et solubilité d'hydrogène dans les enrobés bitumineux. Rapport interne, CEA Marcoule. 2014.

[19] M. Mouazen, A. Poulesquen, F. Bart, J. Masson, M. Charlot, B. Vergnes. Rheological, structural and chemical evolution of bitumen under gamma irradiation. *Fuel Proc. Technol.*, 114 :144–153, 2013.

[20] E. Valcke, F. Rorif, S. Smets. Ageing of EUROBITUM bituminised radioactive waste : An ATR-FTIR spectroscopy study. *J. Nucl. Mat.*, 393(1) :175–185, 2009.

[21] G. Lesoult. *Thermodynamique des matériaux - De l'élaboration des matériaux à la genèse des microstructures*. Presses Polytechniques et Universitaires Romandes, 2010.

[22] S.F. Jones, G.M. Evans, K.P.U. Galvin. Bubble nucleation from gas cavities - a review. *Adv. Colloid Interf. Sci.*, 80 :27–50, 1999.

[23] M. Amon, C. Denson. A study of the dynamics of foam growth : analysis of the growth of closely spaced spherical bubbles. *Polym. Eng. Sci.*, 24(13) :1026–1034, 1984.

[24] L. Rayleigh. VIII. On the pressure developed in a liquid during the collapse of a spherical cavity. *Phil. Mag. Series 6*, 34(200) :94–98, 1917.

[25] E. Silberman, MS. Plesset. The dynamics of cavitation bubbles. *J. App. Mech.*, 17(1) :100–101, 1949.

[26] O. Navon, A. Chekhmir, V. Lyakhovsky. Bubble growth in highly viscous melts : theory , experiments , and autoexplosivity of dome lavas. *Earth Planet. Sci. Letters*, 160 :763–776, 1998.

[27] C. Wagner. Theorie des Alterung von Niederschlagen durch umlosen (Ostwald-Reifung). *Z. Elektrochem.*, 65 :581–591, 1961.

[28] L. Ratke, C. Beckermann. Concurrent growth and coarsening of spheres. *Acta Mat.*, 49(19) :4041–4054, 2001.

[29] K.W. K. Li, A. Schneider. Rise velocities of large bubbles in viscous Newtonian liquids. *J. Amer. Ceram. Soc.*, 76(1) :241–244, 1993.

[30] J.P. Canselier, M. Poux. Procédés d'émulsification - Mécanismes de formation des émulsions. *Techniques de l'Ingénieur*, pages 1–12.

[31] A. Acharya, J.J. Ulbrecht. Note on the influence of viscoelasticity on the coalescence rate of bubbles and drops. *AIChE J.*, 24(2) :348–351, 1978.

[32] D. Funfschilling. Dynamique de bulles dans des fluides rhéologiquement complexes. *Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine*, 1999.

[33] J.W. Kim, W.K. Lee. Coalescence behavior of two bubbles growing side-by-side. *J. Colloid Interf. Sci.*, 123(1) :303–305, 1988.

[34] M.S. Plesset, A. Prosperetti. Bubble dynamics and cavitation. *Ann. Rev. Fluid Mech.*, 9 :145–185, 1977.

[35] J. Barclay, D.S. Riley, R.S.J. Sparks. Analytical models for bubble growth during decompression of high viscosity magmas. *Bull. Volcanol.*, 57 :422–431, 1995.

[36] D.C. Venerus. Diffusion-induced bubble growth in viscous liquids of finite and infinite extent. *Polym. Eng. Sci.*, 41(8) :1390–1398, 2001.

[37] L. Hailemariam, M. Okos, O. Campanella. A mathematical model for the isothermal growth of bubbles in wheat dough. *J. Food Eng.*, 82(4) :466–477, 2007.

[38] J. A. Marqusee, J. Ross. Theory of Ostwald ripening : Competitive growth and its dependence on volume fraction. *J. Chem. Phys.*, 80(1) :536, 1984.

[39] R.T. DeHoff. A geometrically general theory of diffusion controlled coarsening. *Acta Metall. Mater.*, 39(10) :2349–2360, 1991.

[40] N. C. Lautze, T. W. Sisson, M. T. Mangan, T. L. Grove. Segregating gas from melt : an experimental study of the Ostwald ripening of vapor bubbles in magmas. *Contri. to Mineral. Petrol.*, 161(2) :331–347, 2010.

[41] L. Ratke, P. W. Voorhees. *Growth and Coarsening : Ostwald Ripening in Material Processing*. Springer Berlin, 2002.

[42] M.K. Chen, P.W. Voorhees. The dynamics of transient Ostwald ripening. *Model. Simul. Mater. Sci. Eng.*, 1 :591–612, 1993.

[43] J. A. Marqusee, J. Ross. Kinetics of phase transitions : Theory of Ostwald ripening. *J. Chem. Phys.*, 79(1) :373, 1983.

[44] D.S. Martula, R. T. Bonnecaze, D. R. Lloyd. The effects of viscosity on coalescence-induced coalescence. *Intern. J. Multiph Flow*, 29(8) :1265–1282, 2003.

[45] P.W. Voorhees, M.E. Glicksman. Solution of the multi-particle diffusion problem with applications to Ostwald ripening - II. Computer simulations. *Acta Met.*, 32(11) :2013–2030, 1984.

[46] A. D. Brailsford, P. Wynblatt. The dependance of Ostwald ripening kinetics on particle volume fraction. *Acta Met.*, 27 :489–497, 1979.

[47] A.J. Ardell, N. Mardesich, C.N.J. Wagner. Antiphase domain growth in Cu3Au : quantative comparison between theory and experiment. *Acta Met.*, 27 :1261–1269, 1979.

[48] P.W. Voorhees, M.E. Glicksman. Solution of the multi-particle diffusion problem with applications to Ostwald ripening - I. Theory. *Acta Met.*, 32(11) :2001–2011, 1984.

[49] S.P. Marsh, M.E. Glicksman. Overview of geometric effects on coarsening of mushy zones. *Metall. Mat. Trans.*, 27 :557–567, 1996.

[50] A. Baldan. Progress in Ostwald ripening theories and their applications to nickel-base superalloys. *J. Mat. Sci.*, 37 :2171–2202, 2002.

[51] J. S. Hadamard. Mouvement permanent lent d'une sphere liquide et visqueuse dans un liquide visqueux. *CR Acad. Sci.*, 152, 1911.

[52] T. Gerya. *Introduction to Numerical Geodynamic Modelling.* Cambridge University Press, 2010.

[53] W. Huang, R. D. Russell. *Adaptive Moving Mesh Methods*, volume 174 of *Applied Mathematical Sciences.* Springer New York, 2011.

[54] E. Bigot. Simulation tridimensionnelle du remplissage de corps minces par injection. *Thèse de doctorat, Ecole des Mines de Paris*, 2001.

[55] J. Wendt. *Computational Fluid Dynamics - An Introduction.* Springer Berlin, 2009.

[56] J. Crank, P. Nicolson, D. R. Hartree. A practical method for numerical evaluation of solutions of partial differential equations of the heat-conduction type. *Mathematical Proceedings of the Cambridge Philosophical Society*, 43(01) :50–67, 1947.

[57] I. Krieger, T. Dougherty. A mechanism for non-Newtonian flow in suspensions of rigid spheres. *Trans. Soc. Rheol.*, 3(1) :137–152, 1959.

[58] E.C. Bingham. *Fluidity and Plasticity.* McGraw-Hill Book Company New York, 1922.

[59] P. Saramito. A new constitutive equation for elastoviscoplastic fluid flows. *J. Non-Newt. Fluid Mech.*, 145(1) :1–14, 2007.

[60] J. G. Oldroyd. On the formulation of rheological equations of state. *Proc. Royal Soc. A*, 200(1063) :523–541, 1950.

[61] N. Dubash, I.A. Frigaard. Propagation and stopping of air bubbles in Carbopol solutions. *J. Non-Newt. Fluid Mech.*, 142(1-3) :123–134, 2007.

[62] D. Sikorski, H. Tabuteau, J. R. de Bruyn. Motion and shape of bubbles rising through a yield-stress fluid. *J. Non-Newt. Fluid Mech.*, 159(1-3) :10–16, 2009.

[63] H. Tabuteau, P. Coussot, J. R. de Bruyn. Drag force on a sphere in steady motion through a yield-stress fluid. *J. Rheol.*, 51(1) :125, 2007.

[64] J. Blackery, E. Mitsoulis. Creeping motion of a sphere in tubes filled with a Bingham plastic material. *J. Non-Newt Fluid Mech.*, 70 :59–77, 1997.

[65] N. Mougin, A. Magnin, J.M. Piau. The significant influence of internal stresses on the dynamics of bubbles in a yield stress fluid. *J. Non-Newt. Fluid Mech.*, 171-172 :42–55, 2012.

[66] M. Beaulne, E. Mitsoulis. Creeping motion of a sphere in tubes filled with Herschel–Bulkley fluids. *J. Non-Newt. Fluid Mech.*, 72(1) :55–71, 1997.

[67] N. Beris, J. Tsamopoulos, R. C. Armstrong, R. Brown. Creeping motion of a sphere through a Bingham plastic. *J. Fluid Mech.*, 158 :219, 2006.

[68] K. Terasaka, H. Tsuge. Bubble formation at a nozzle submerged in viscous liquids having yield stress. *Chem. Eng. Sci.*, 56(10) :3237–3245, 2001.

[69] J. Daeseong, T. Shripad. Investigation of bubble breakup and coalescence in a packed-bed reactor – Part 1 : A comparative study of bubble breakup and coalescence models. *Intern. J. Multiph. Flow*, 37(9) :995–1002, 2011.

[70] J. Daeseong, T. Shripad. Investigation of bubble breakup and coalescence in a packed-bed reactor – Part 2 : Development of a new bubble breakup and coalescence model. *Intern. J. Multiph. Flow*, 37(9) :1003–1012, 2011.

[71] D. Funfschilling, H.Z. Li. Flow of non-Newtonian fluids around bubbles : PIV measurements and birefringence visualisation. *Chem. Eng. Sci.*, 56 :1137–1141, 2001.

[72] T. Hirose, M. Moo-Young. Bubble drag and mass transfer in non-Newtonian fluids : creeping flow with power-law fluids. *Can. J. Chem. Eng.*, 47(11) :265–267, 1969.

[73] H. Z. Li, Y. Mouline, L. Choplin, N. Midoux. Chaotic bubble coalescence in non-Newtonian fluids. *Int. J. Multiphase Flow*, 23(4) :713–723, 1997.

Annexe : formulaire en coordonnées sphériques

Gradient d'un champ scalaire f :

$$\nabla f = (\frac{\partial f}{\partial r}, \frac{1}{r}\frac{\partial f}{\partial \theta}, \frac{1}{rsin\theta}\frac{\partial f}{\partial \phi})$$

Divergence d'un vecteur $\overrightarrow{a}$ = (u,v,w) :

$$\overrightarrow{\nabla} \cdot \overrightarrow{a} = \frac{1}{r^2}\frac{\partial(r^2 u)}{\partial r} + \frac{1}{rsin\theta}\frac{\partial(vsin\theta)}{\partial \theta} + \frac{1}{rsin\theta}\frac{\partial w}{\partial \phi}$$

Dérivée particulaire :

$$\frac{df}{dt} = \frac{\partial f}{\partial t} + u\frac{\partial f}{\partial r} + \frac{v}{r}\frac{\partial f}{\partial \theta} + \frac{w}{r \cdot sin\theta}\frac{\partial f}{\partial \phi}$$

Laplacien :

$$\Delta f = \frac{1}{r^2}\frac{\partial}{\partial r}(r^2\frac{\partial f}{\partial r}) + \frac{1}{r^2 sin\theta}\frac{\partial}{\partial \theta}(sin\theta\frac{\partial f}{\partial \theta}) + \frac{1}{r^2 sin^2(\theta)}\frac{\partial^2 f}{\partial \phi^2}$$

Tenseur gradient de vitesse :

$$\left[\nabla u\right] = \begin{bmatrix} \frac{\partial u}{\partial r} & \frac{1}{r}\frac{\partial u}{\partial \theta} - \frac{v}{r} & \frac{1}{r \cdot sin\theta}\frac{\partial u}{\partial \phi} - \frac{w}{r} \\ \frac{\partial v}{\partial r} & \frac{1}{r}\frac{\partial v}{\partial \theta} + \frac{u}{r} & \frac{1}{r \cdot sin\theta}\frac{\partial v}{\partial \phi} - \frac{cotg\theta}{r}w \\ \frac{\partial w}{\partial r} & \frac{1}{r}\frac{\partial w}{\partial \theta} & \frac{1}{r \cdot sin\theta}\frac{\partial w}{\partial \phi} + \frac{v}{r}cotg\theta + \frac{u}{r} \end{bmatrix}$$

Tenseur vitesse de déformation :

$$\left[\dot{\varepsilon}\right] = \begin{bmatrix} \frac{\partial u}{\partial r} & \frac{1}{2}(\frac{1}{r}\frac{\partial u}{\partial \theta} + \frac{\partial v}{\partial r} - \frac{v}{r}) & \frac{1}{2}(\frac{1}{r \cdot sin\theta}\frac{\partial u}{\partial \phi} + \frac{\partial w}{\partial r} - \frac{w}{r}) \\ \frac{1}{2}(\frac{1}{r}\frac{\partial u}{\partial \theta} + \frac{\partial v}{\partial r} - \frac{v}{r}) & \frac{1}{r}\frac{\partial v}{\partial \theta} + \frac{u}{r} & \frac{1}{2}(\frac{1}{r}\frac{\partial w}{\partial \theta} + \frac{1}{r \cdot sin\theta}\frac{\partial v}{\partial \phi} - \frac{cotg\theta}{r}w \\ \frac{1}{2}(\frac{1}{r \cdot sin\theta}\frac{\partial u}{\partial \phi} + \frac{\partial w}{\partial r} - \frac{w}{r}) & \frac{1}{2}(\frac{1}{r}\frac{\partial w}{\partial \theta} + \frac{1}{r \cdot sin\theta}\frac{\partial v}{\partial \phi} - \frac{cotg\theta}{r}w & \frac{1}{r \cdot sin\theta}\frac{\partial w}{\partial \phi} + \frac{v}{r}cotg\theta + \frac{u}{r} \end{bmatrix}$$

Equilibre dynamique vectoriel :

$$\overrightarrow{\nabla} \cdot (\overline{\sigma}) + \overrightarrow{F} - \rho\overrightarrow{\gamma} = \overrightarrow{0}$$

Equilibre dynamique :

$$\frac{\partial \sigma_{rr}}{\partial r} + \frac{1}{r}\frac{\partial \sigma_{r\theta}}{\partial \theta} + \frac{1}{rsin\theta}\frac{\partial \sigma_{r\phi}}{\partial \phi} + \frac{1}{r}(2\sigma_{rr} - \sigma_{\theta\theta} - \sigma_{\phi\phi} + \sigma_{r\theta}cotg\theta) + F_r - \rho\gamma_r = 0$$

$$\frac{\partial \sigma_{r\theta}}{\partial r} + \frac{1}{r}\frac{\partial \sigma_{\theta\theta}}{\partial \theta} + \frac{1}{rsin\theta}\frac{\partial \sigma_{\theta\phi}}{\partial \phi} + \frac{1}{r}(3\sigma_{r\theta} + (\sigma_{\theta\theta} - \sigma_{\phi\phi})cotg\theta) + F_\theta - \rho\gamma_\theta = 0$$

$$\frac{\partial \sigma_{r\phi}}{\partial r} + \frac{1}{r}\frac{\partial \sigma_{\theta\phi}}{\partial \theta} + \frac{1}{rsin\theta}\frac{\partial \sigma_{\phi\phi}}{\partial \phi} + \frac{1}{r}(3\sigma_{r\phi} + 2\sigma_{\theta\phi}cotg\theta) + F_\phi - \rho\gamma_\phi = 0$$

Equations de Navier-Stokes :

$$-\frac{\partial p}{\partial r} + \eta\left(\Delta u - \frac{2u}{r^2} - \frac{2}{r^2}\frac{\partial v}{\partial \theta} - \frac{2}{r^2}vcotg\theta - \frac{2}{r^2sin\theta}\frac{\partial w}{\partial \phi}\right) + F_r - \rho\gamma_r = 0$$

$$-\frac{1}{r}\frac{\partial p}{\partial \theta} + \eta\left(\Delta v + \frac{2}{r^2}\frac{\partial u}{\partial \theta} - \frac{v}{r^2sin^2\theta} - \frac{2cos\theta}{r^2sin^2\theta}\frac{\partial w}{\partial \phi}\right) + F_\theta - \rho\gamma_\theta = 0$$

$$-\frac{1}{rsin\theta}\frac{\partial p}{\partial \phi} + \eta\left(\Delta w - \frac{w}{r^2sin^2\theta} + \frac{2}{r^2sin^2\theta}\frac{\partial u}{\partial \phi} + \frac{2cos\theta}{r^2sin^2\theta}\frac{\partial v}{\partial \phi}\right) + F_\phi - \rho\gamma_\phi = 0$$

avec

$$\gamma_r = \frac{du}{dt} - \frac{v^2 + w^2}{r}$$

$$\gamma_\theta = \frac{dv}{dt} + \frac{uv}{r} - \frac{w^2cotg\theta}{r}$$

$$\gamma_\phi = \frac{dw}{dt} + \frac{uw}{r} + \frac{vw}{r}cotg\theta$$

Modélisation du gonflement radiolytique d'enrobés bitumineux

Résumé : L'objectif de ce travail est de prédire le gonflement de fûts d'enrobés bitumineux contenant des déchets radioactifs en condition d'entreposage, de transport et de stockage. L'incorporation de radionucléides dans du bitume provoque en effet sa radiolyse et du dihydrogène est ainsi généré dans le matériau. Ce gaz est solubilisé dans la matrice jusqu'à ce que sa concentration atteigne une valeur limite, la saturation. Au-delà de celle-ci, un mécanisme de germination a lieu : des bulles sont formées. Elles vont par la suite croître grâce à l'apport de gaz par radiolyse et migrer sous l'effet de la poussée d'Archimède. Le gonflement du matériau résulte alors de la compétition entre création et évacuation de gaz. Un modèle a été construit pour décrire l'évolution d'une population de bulles. Sa résolution analytique n'étant pas possible, un code numérique a été développé. Les résultats montrent qu'une augmentation de la viscosité du fluide, du terme source de gaz apporté par radiolyse ou de la hauteur du récipient induisent une augmentation du gonflement et qu'une augmentation du coefficient de diffusion du gaz dans la matrice diminue le gonflement. Lorsque le fluide présente un seuil d'écoulement, le comportement de la population de bulles est modifié et l'évacuation de gaz par migration des bulles se fait par à-coups, contrairement au cas d'un fluide newtonien où une évacuation stationnaire est atteinte. Cette dernière a enfin servi à l'optimisation des conditions opératoires.

Mots clés : bitume, fluide à seuil, gonflement, croissance, bulles, mûrissement, migration, simulation numérique

Modeling of bubble growth in complex fluids. Application to radiolytic swelling of nuclear bituminized waste products

Abstract: The aim of this PhD thesis is to predict the swelling of bitumen barrels in which radioactive salts are mixed. The bitumen exposed to radioactivity undergoes a chemical reaction: the radiolys. This implies a generation of dihydrogen. The created is solubilized until the concentration reaches a limit value which is called saturation. Over this limit nucleation of bubbles is observed. Then they will grow thank to the contribution of the gas generated by radiolys and they will be submitted to Archimede's principle so that they will rise in the fluid. The swelling is the result of the competition between generation and evacuation of gas. A model has been built to describe the evolution of a bubble population. Because of it is not possible to solve it analitically, a numerical program was developed. The results show that an increase of the fluid viscosity, the gas generation or the container height lead to an increase of the swelling and that an increase of the diffusion coefficient contributes to a decrease of the swelling. In the particular case of a yield stress fluid, the behavior of the bubble population is modified and the evacuation of gas is done with several shots, at the opposite of the case of a Newtonian fluid for which a stationary evacuation is reached.

Keywords: bitumen, yield stress fluid, swelling, growth, bubbles, coarsening, migration, numerical simulation

MINES ParisTech

ParisTech
INSTITUT DES SCIENCES ET TECHNOLOGIES
PARIS INSTITUTE OF TECHNOLOGY