

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 $D = 5 \times 10^{-11} \text{ m s}^{-1}$ et un terme source $\dot{d} = 4,5 \text{ Gy/h}$.

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 $9 \mu\text{m}$ et $60 \mu\text{m}$ (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 ($170 \mu\text{m}$ pour la population de rayon moyen initial $60 \mu\text{m}$ et $174 \mu\text{m}$ pour la population de rayon moyen initial $9 \mu\text{m}$).

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 $12 \mu\text{m}$. Leur taille au bout de 1 jour étant de l'ordre de $150 \mu\text{m}$, la migration des bulles relativement à

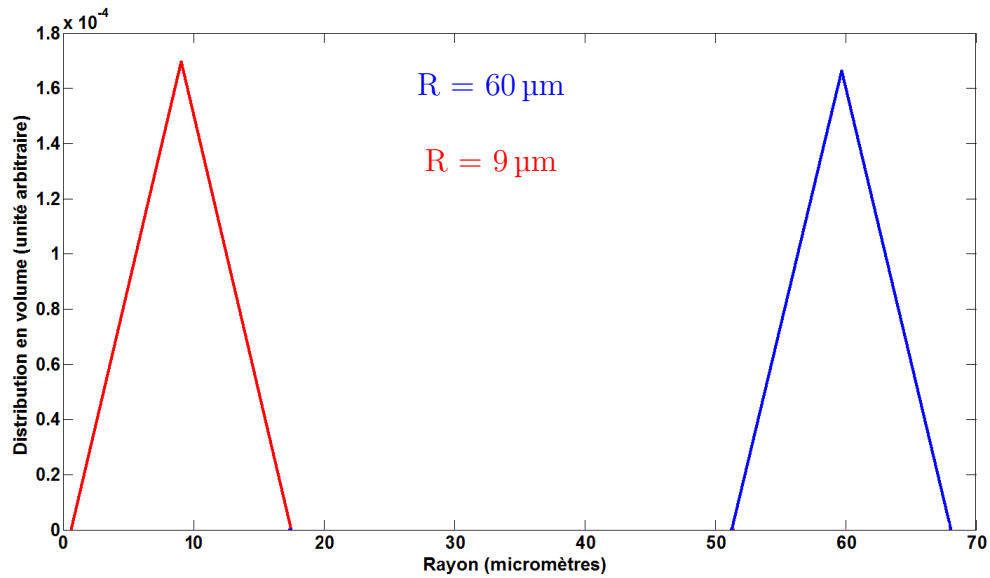


FIGURE 4.1 – Populations initialement insérées

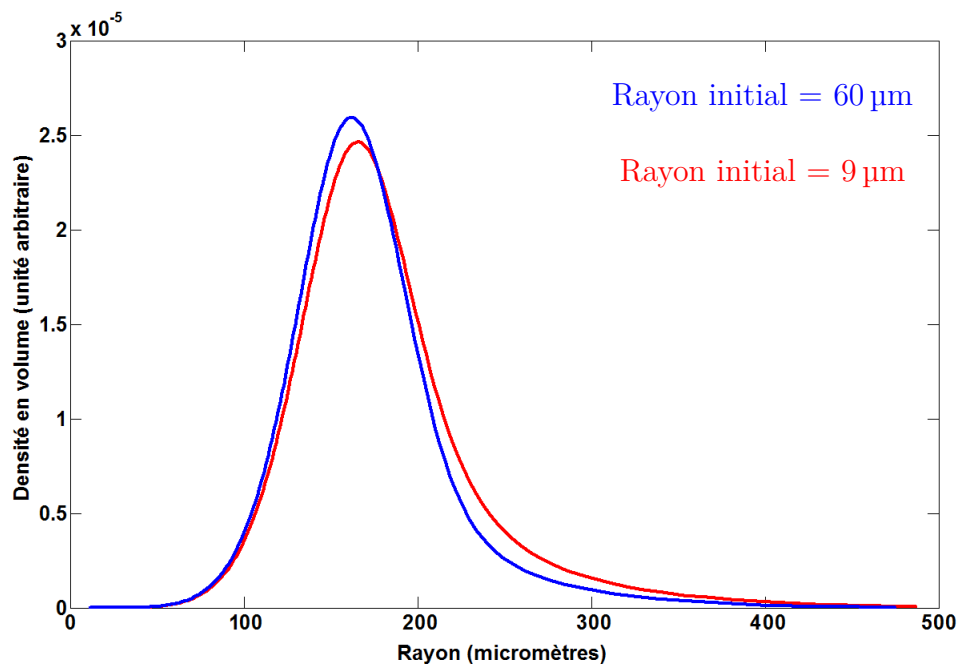


FIGURE 4.2 – Évolution des deux populations après un jour

leur taille est négligeable. On peut donc considérer qu'en deçà d'une taille de $60 \mu\text{m}$, 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 $60 \mu\text{m}$.

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 $60\ \mu\text{m}$ 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.

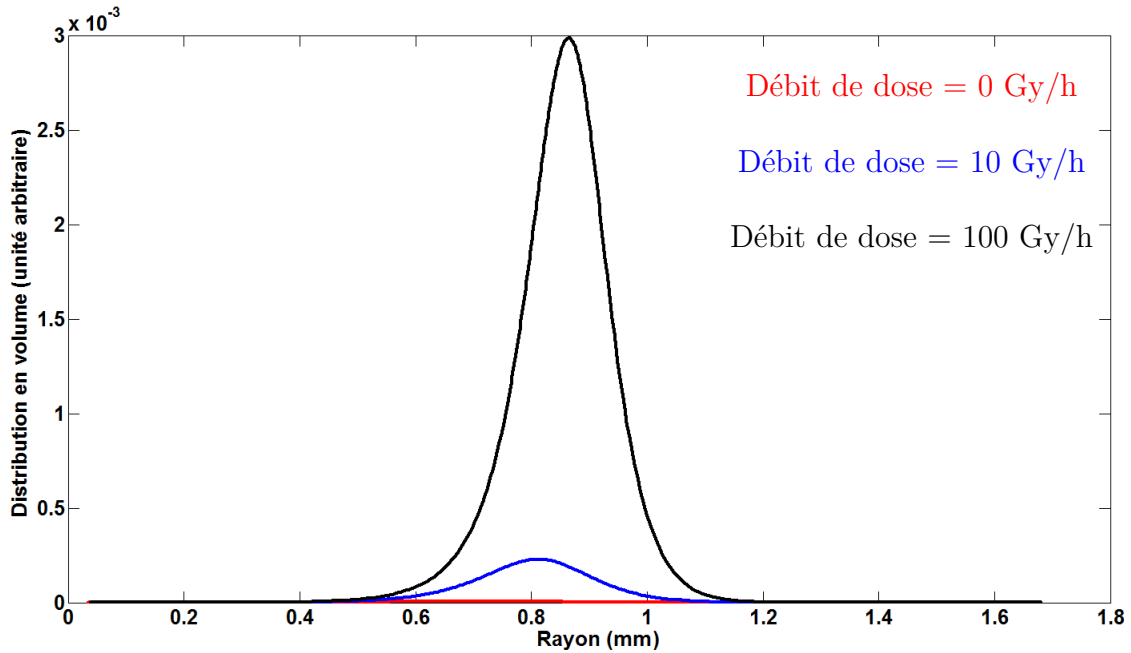


FIGURE 4.3 – Distributions en volume d’une même population initiale pour différents termes source au bout de 3 mois

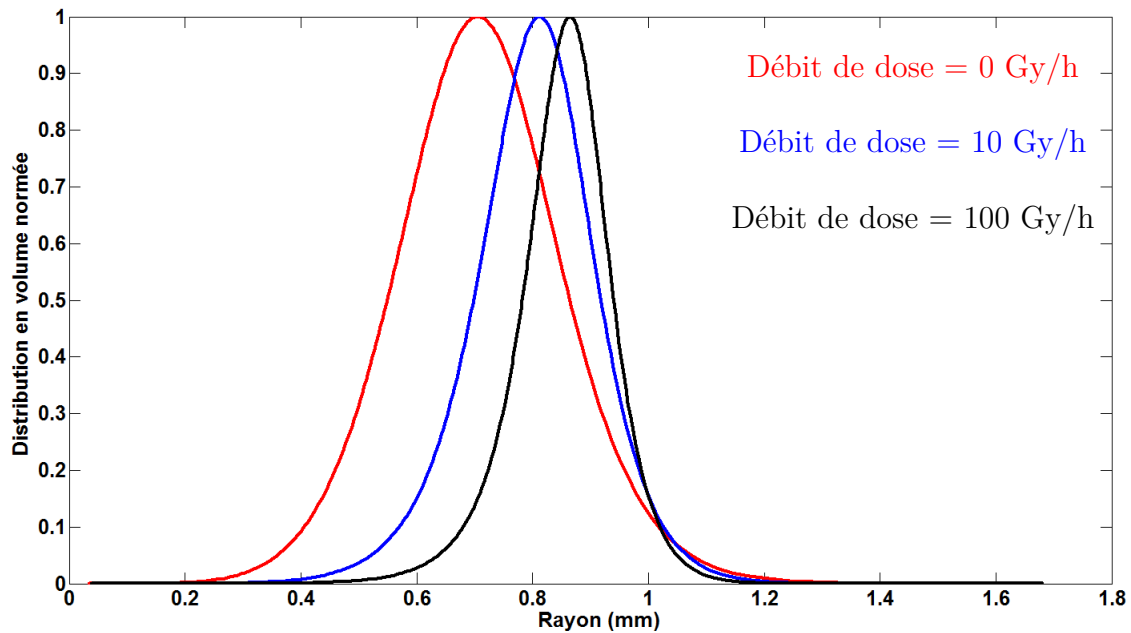


FIGURE 4.4 – Distributions en volume (normées) d’une même population initiale pour différents termes source au bout de 3 mois

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

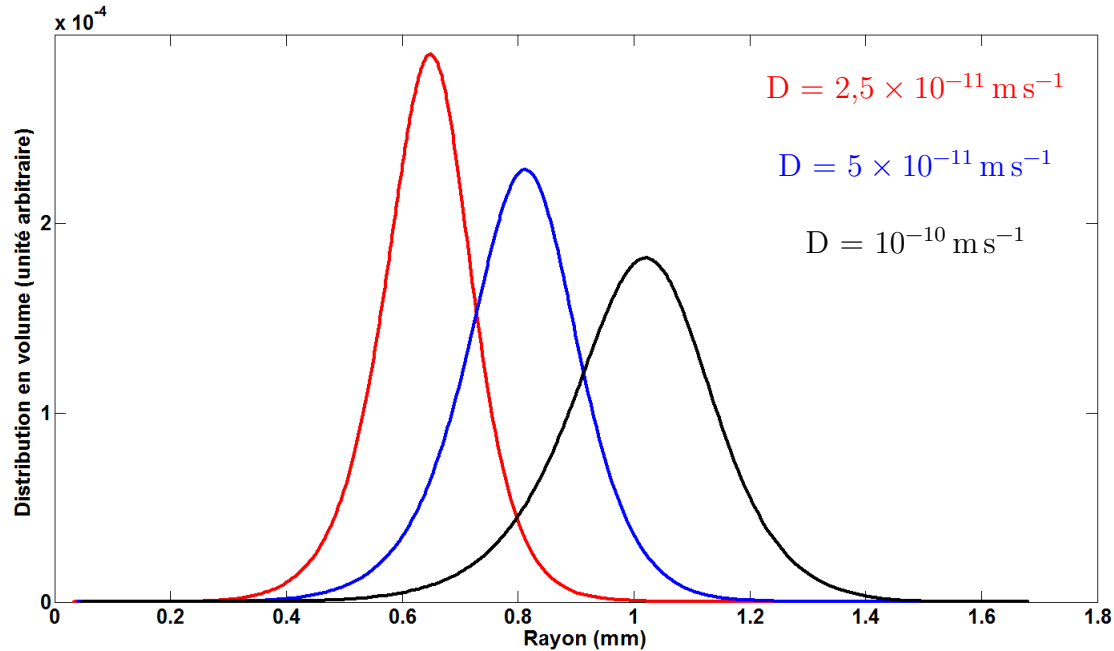


FIGURE 4.5 – Distributions en volume d’une même population initiale dans des fluides de différents coefficients de diffusion au bout de 3 mois

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 est 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 $\eta_0 = 10^6$ Pa s, une concentration à saturation $c_s = 2,7$ g m⁻³, une solubilité $S_o = 0,03$, un débit de dose $\dot{d} = 4,5$ Gy h⁻¹, une différence de masse volumique entre l'enrobé et le gaz $\Delta\rho = 1390$ kg m⁻³, un coefficient de diffusion $D = 5 \times 10^{-11}$ m² s⁻¹, une tension de surface bitume/dihydrogène $\gamma = 0,03$ N m et une pression ambiante $p_\infty = 10^5$ 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 pas 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.

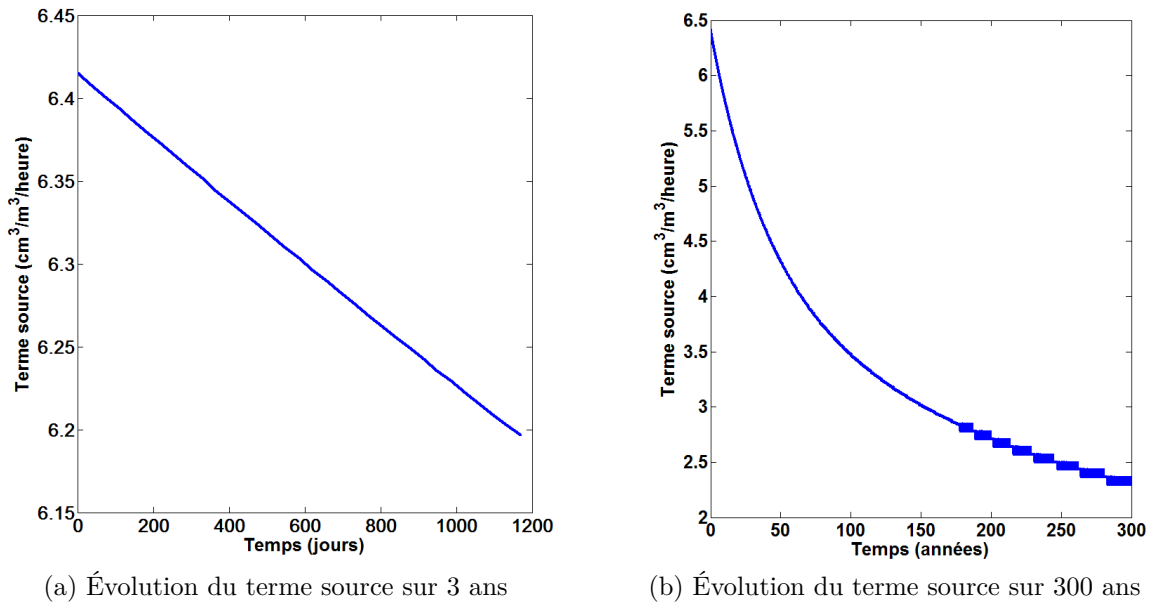


FIGURE 4.6 – Évolution du terme source donné par RABBI en fonction du temps

Avant d'analyser les simulations numériques, il est important de vérifier que le code n'introduit 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.

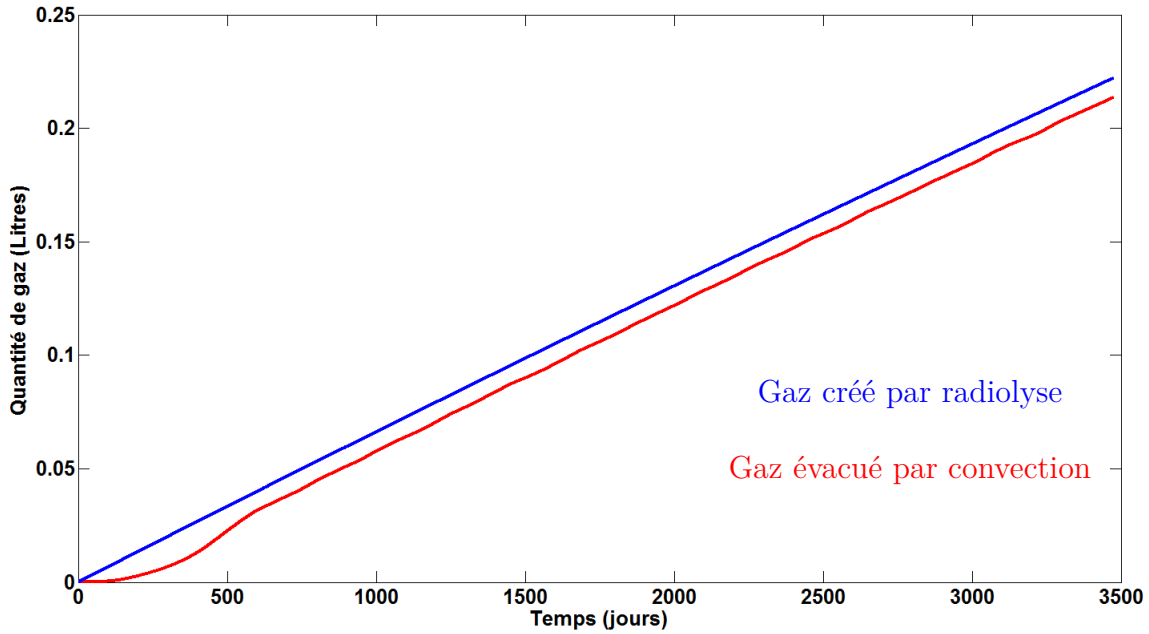


FIGURE 4.7 – Évolution du gaz créé par radiolyse et du gaz évacué par convection au cours du temps

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 est 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.

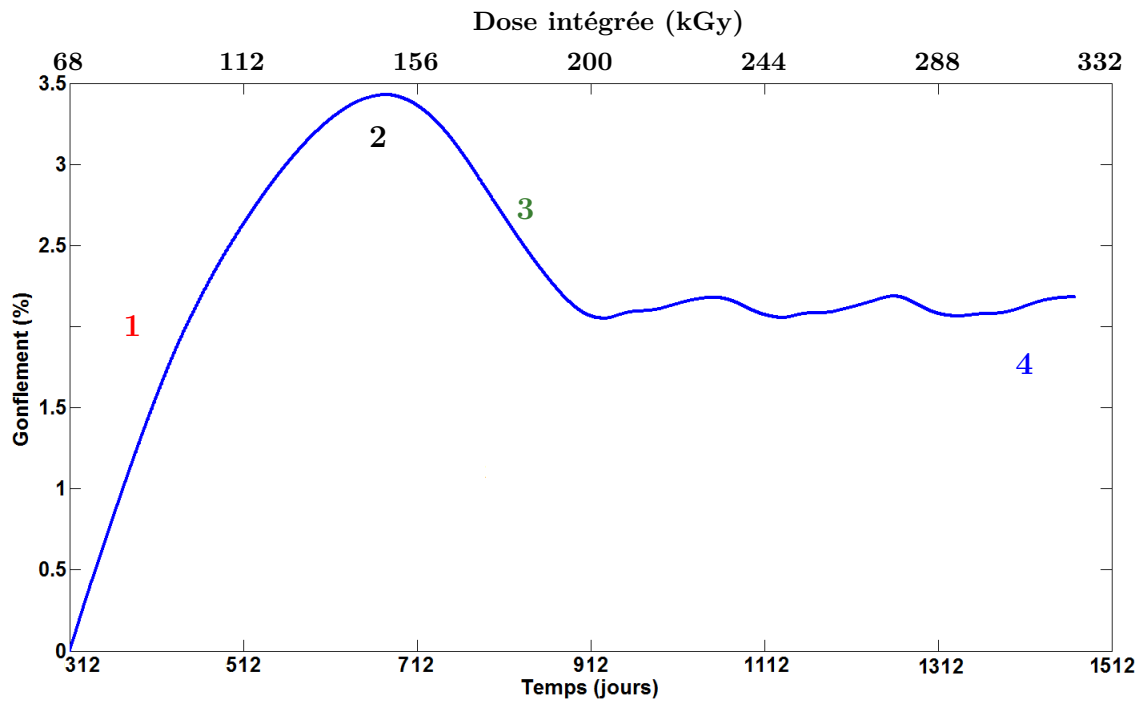


FIGURE 4.8 – Évolution du gonflement macroscopique au cours du temps pour un échantillon de 8 cm de hauteur avec une sursaturation limite 0.01

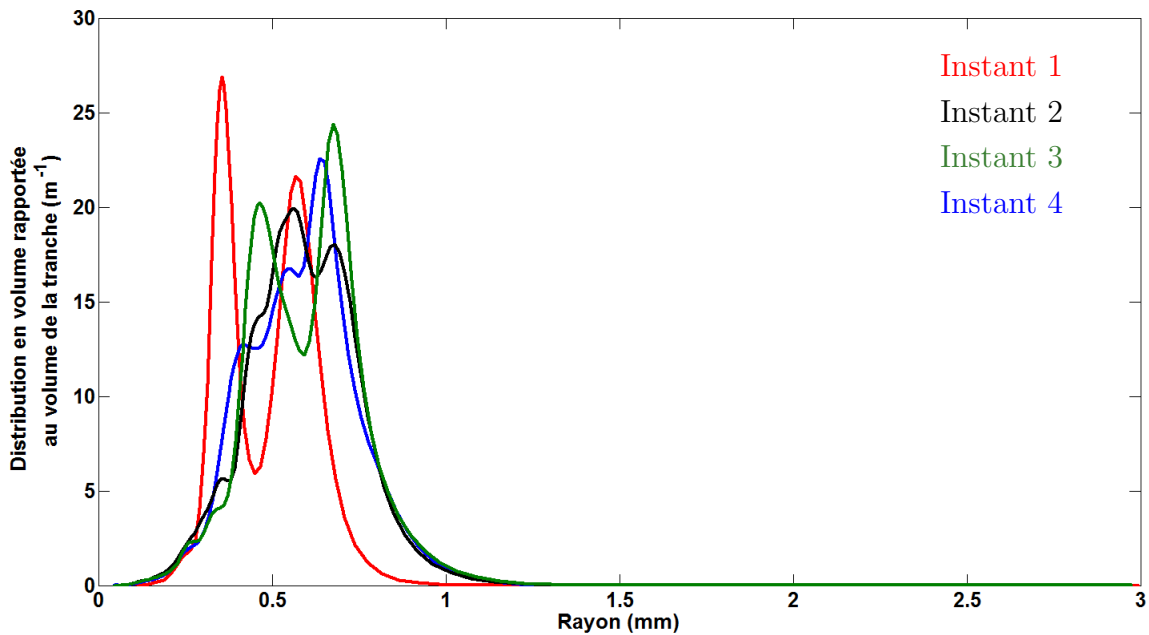


FIGURE 4.9 – Distributions de bulles en volume en bas du récipient pour 4 instants de la simulation

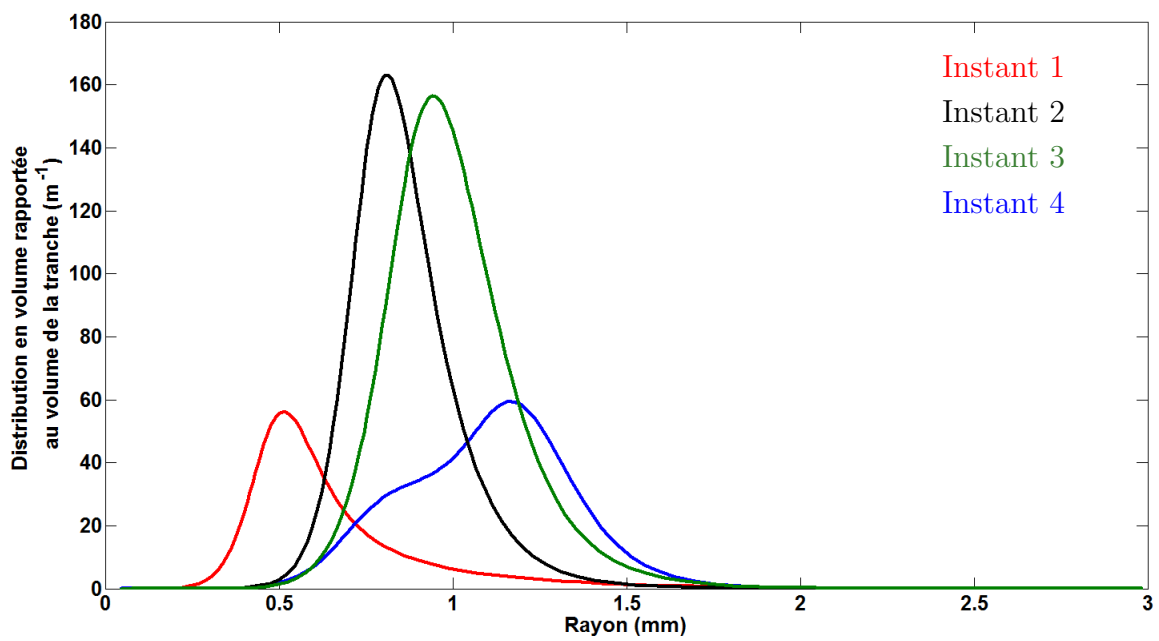


FIGURE 4.10 – Distributions de bulles en volume en haut du récipient pour 4 instants de la simulation

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.

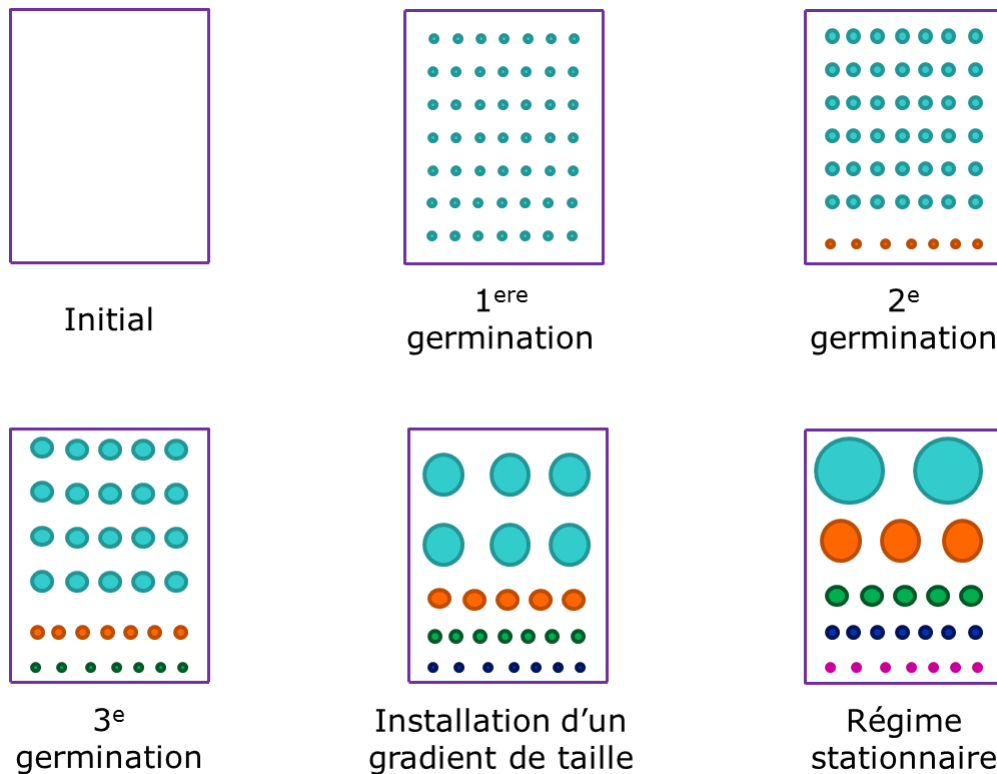


FIGURE 4.11 – Établissement du gradient de taille de bulles selon l'axe vertical lié au régime stationnaire dans le récipient

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.

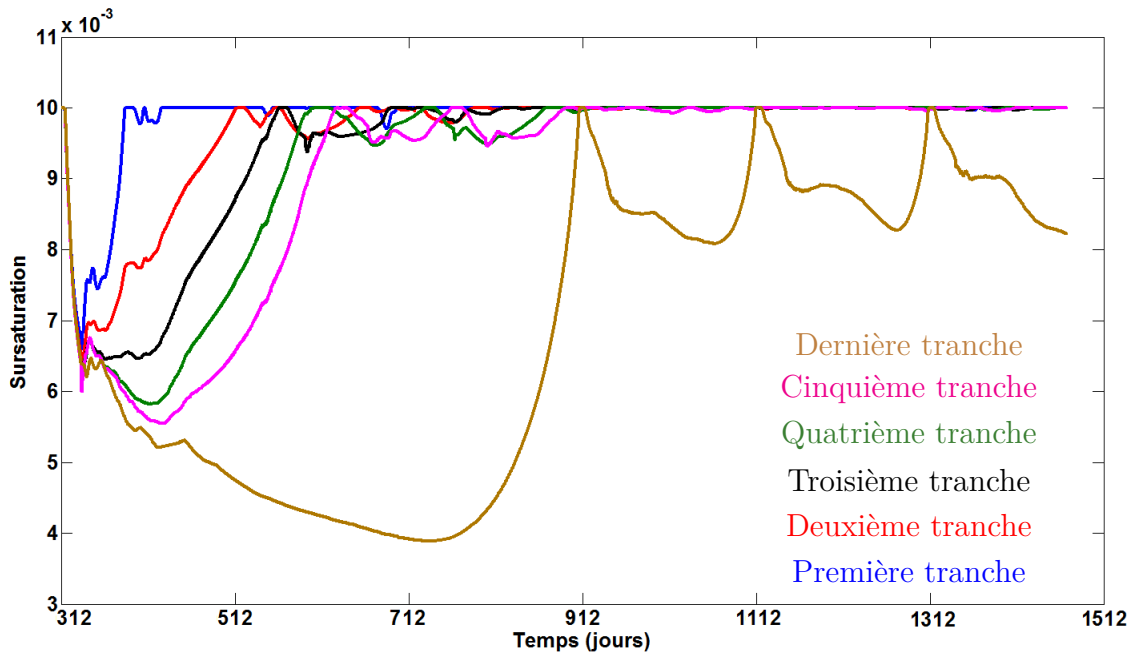


FIGURE 4.12 – Évolution de la sursaturation en fonction du temps dans plusieurs tranches de l'échantillon pour un maillage vertical à 20 nœuds

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) :

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

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

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.

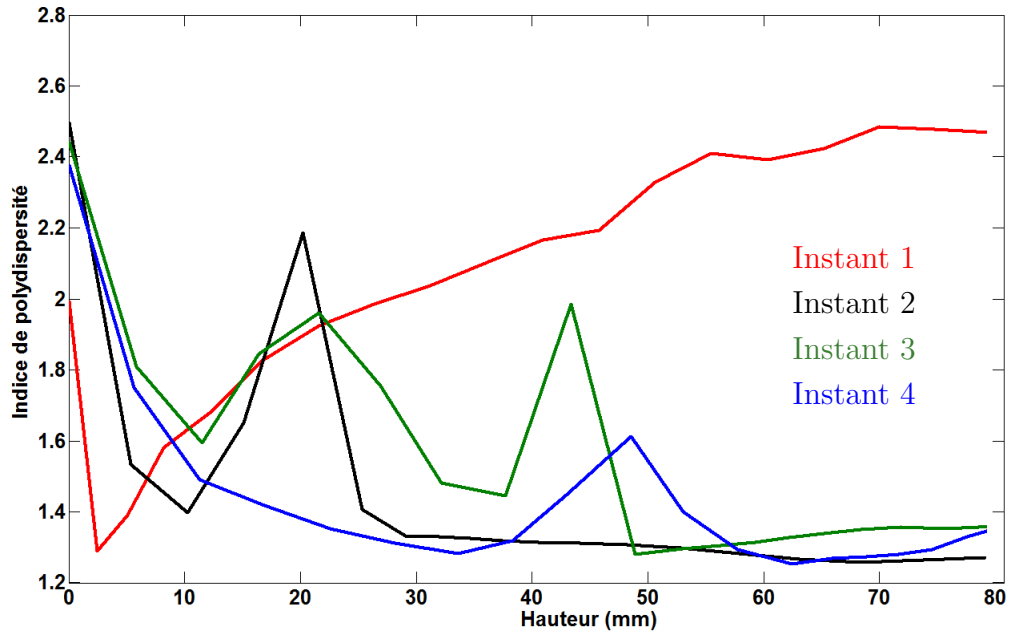


FIGURE 4.13 – Évolution de l'indice de polydispersité de la population en fonction de la hauteur pour 4 instants de la simulation

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.

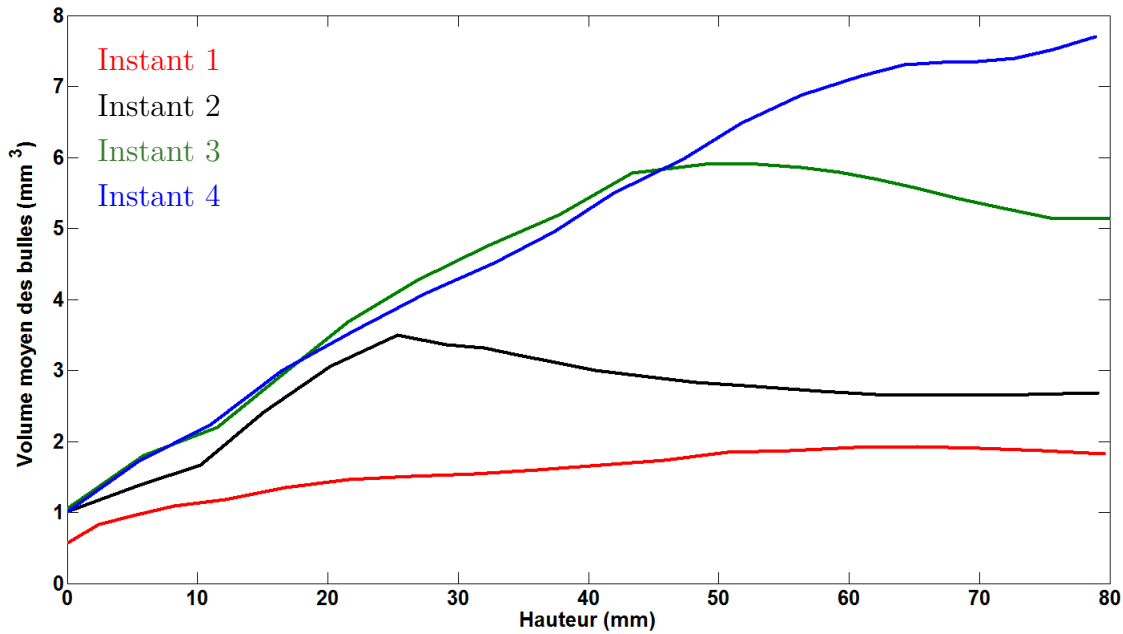


FIGURE 4.14 – Évolution du volume moyen des bulles en fonction de la hauteur pour 4 instants de la simulation

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.

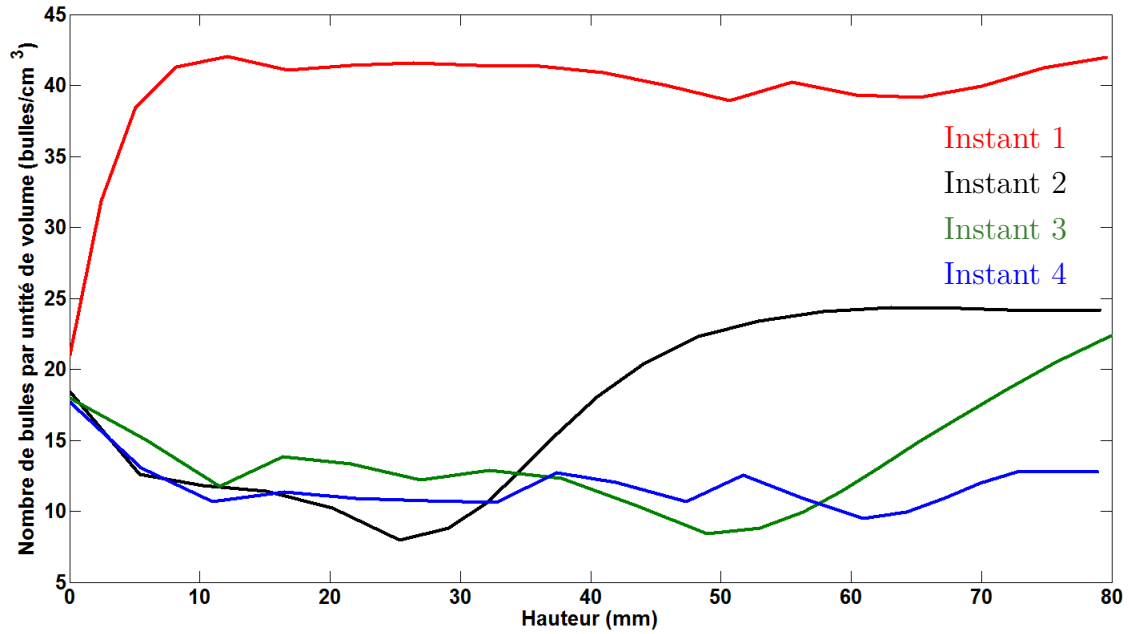


FIGURE 4.15 – Évolution du nombre de bulles par unité de volume en fonction de la hauteur pour 4 instants de la simulation

Évolution de la sursaturation

A l'instant 1, beaucoup de bulles ont été insérées. Cela induit un fort pompage de gaz et par conséquent 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 gaz¹ 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

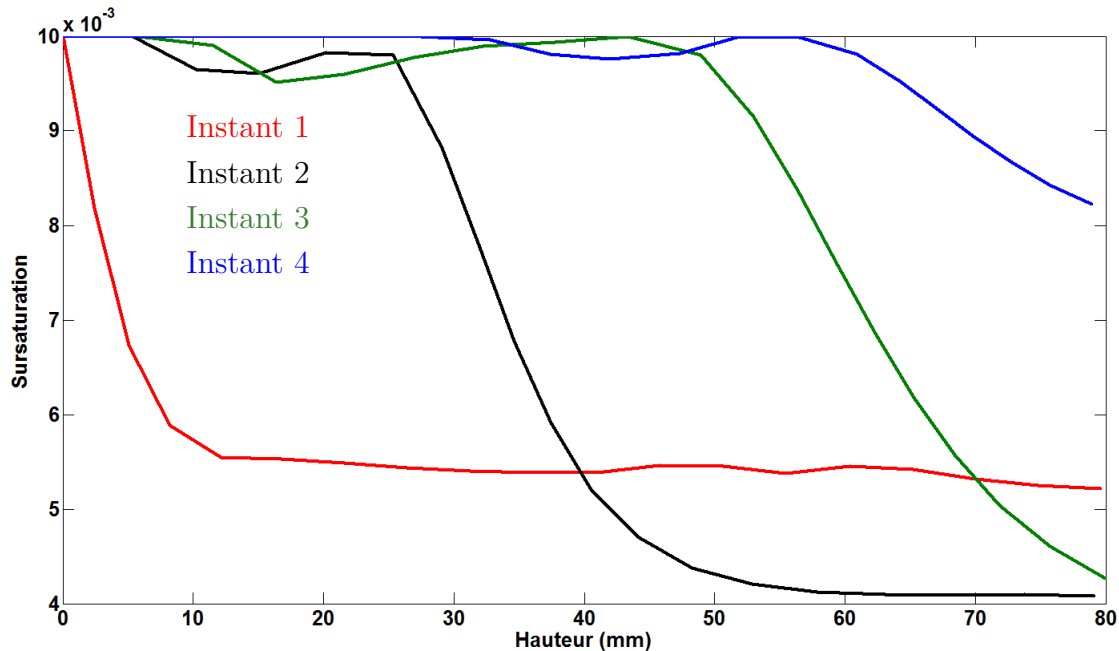


FIGURE 4.16 – Évolution de la sursaturation en fonction de la hauteur pour 4 instants de la simulation

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 augmentation 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 importante 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 gaz², 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.

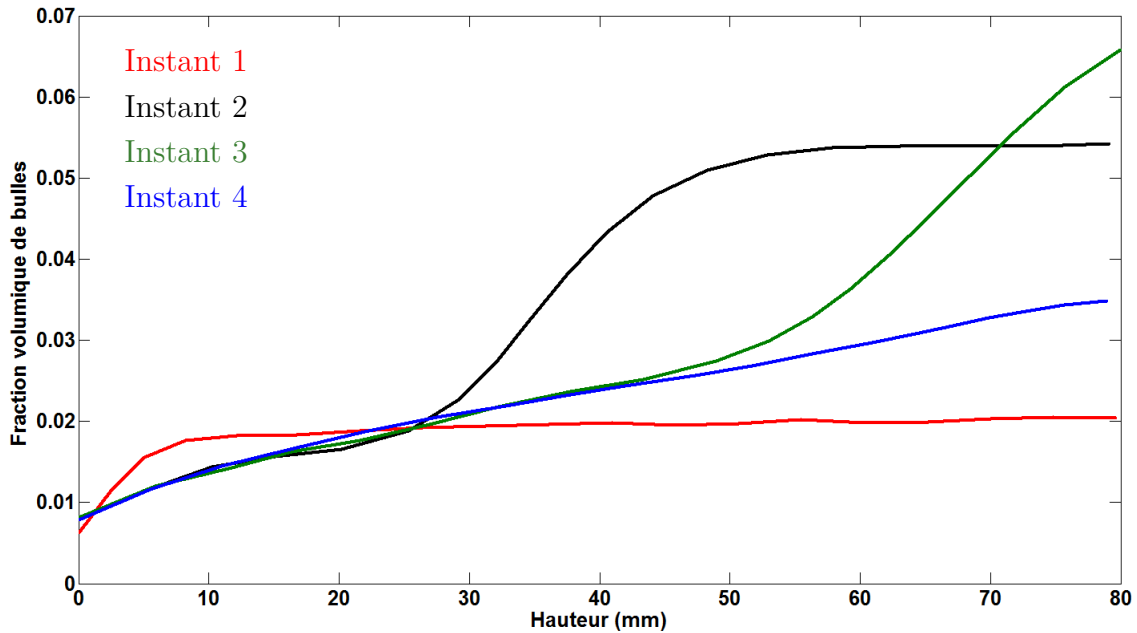


FIGURE 4.17 – Évolution de la fraction volumique des bulles en fonction de la hauteur pour 4 instants de la simulation

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.

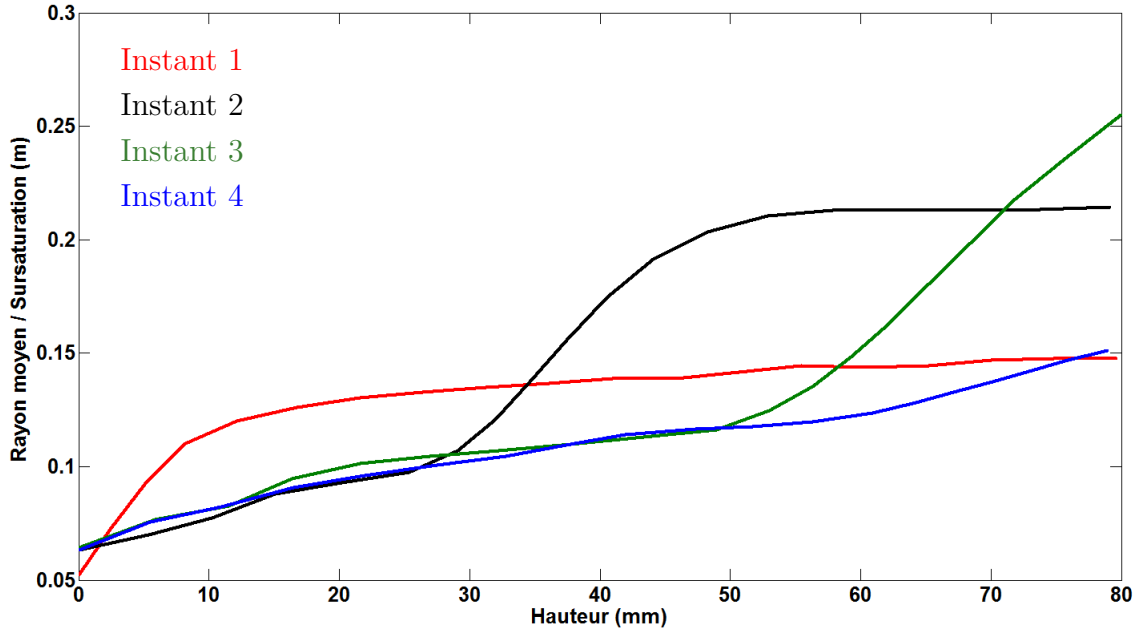


FIGURE 4.18 – Évolution du rapport entre le rayon moyen des bulles et la sursaturation en fonction de la hauteur en gonflement stationnaire

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

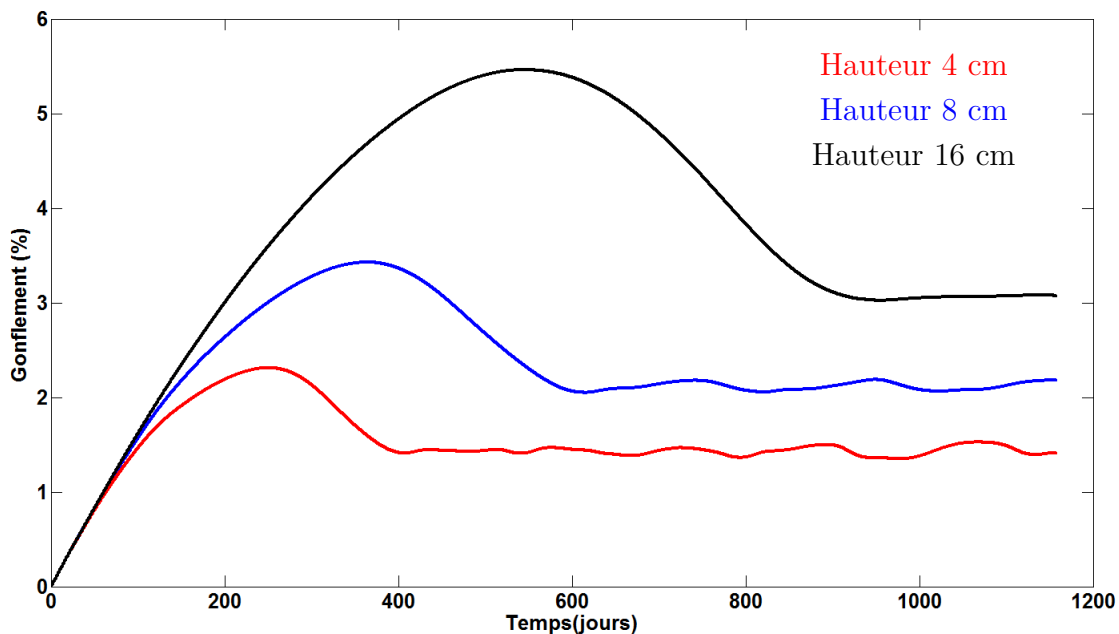


FIGURE 4.19 – Évolution du gonflement macroscopique en fonction du temps pour plusieurs hauteurs de fût

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

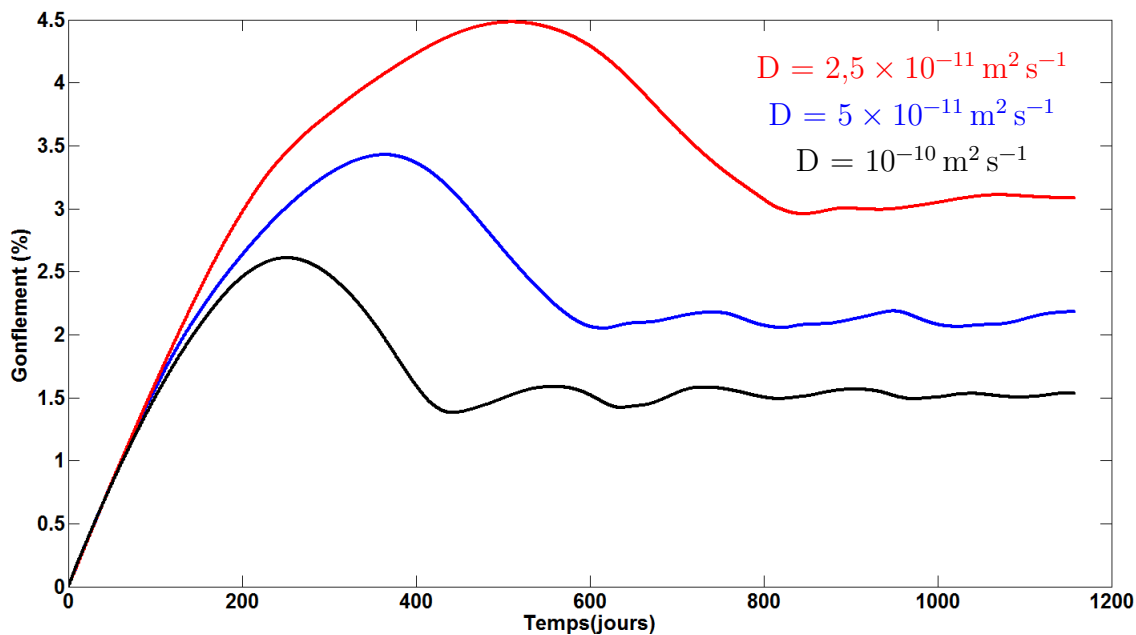


FIGURE 4.20 – Évolution du gonflement macroscopique en fonction du temps pour plusieurs coefficients de diffusion

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 diffusivo 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.

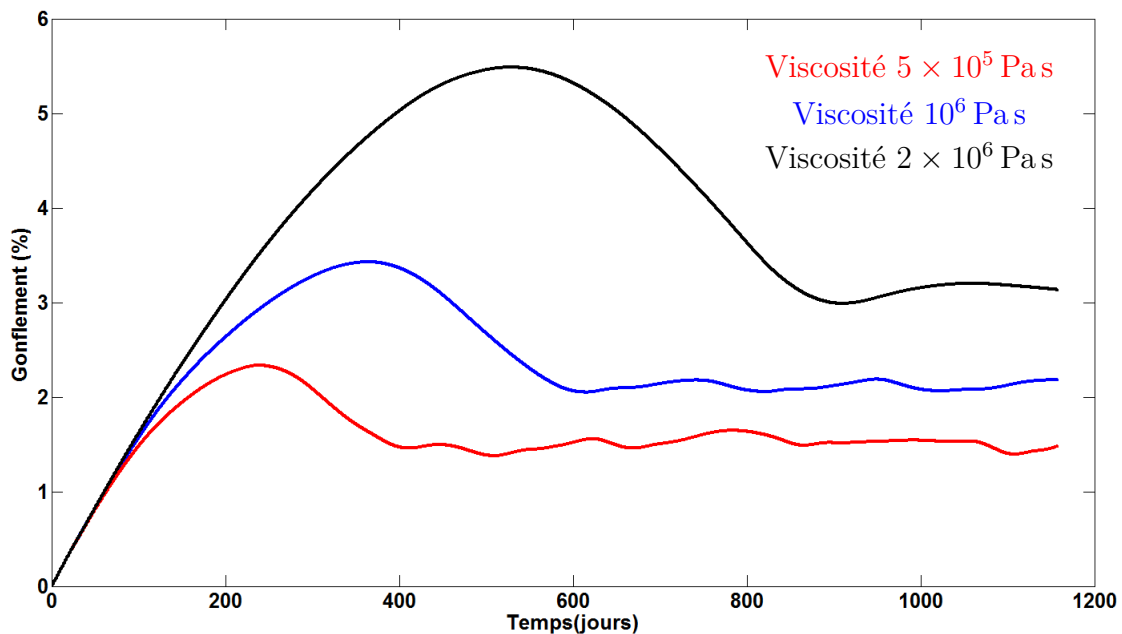


FIGURE 4.21 – Évolution du gonflement macroscopique en fonction du temps pour plusieurs viscosités de l'enrobé

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.

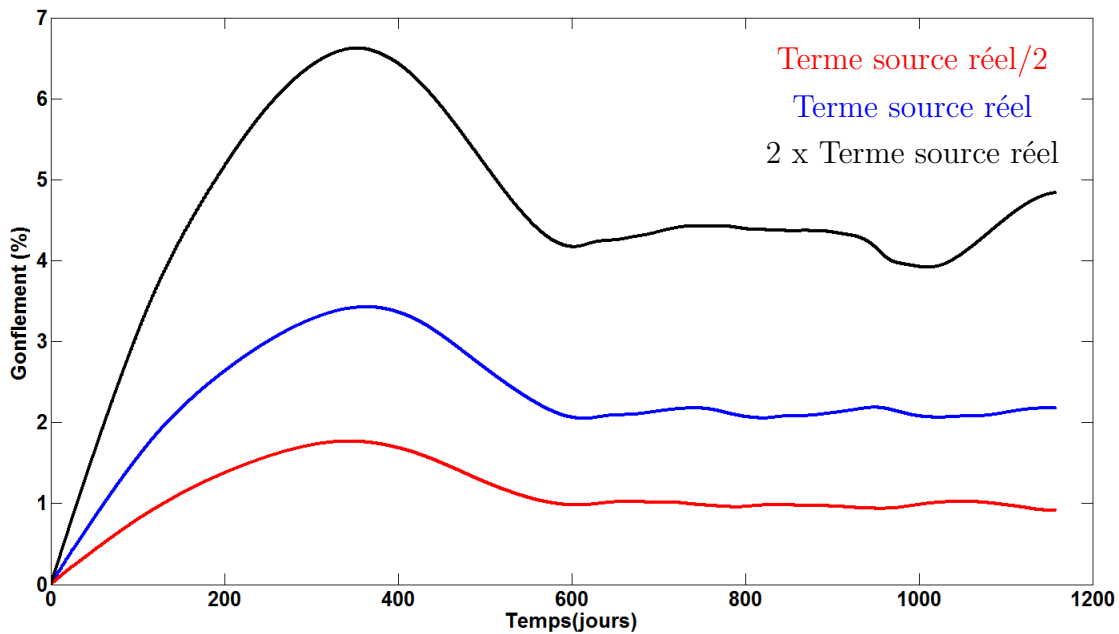


FIGURE 4.22 – Évolution du gonflement macroscopique en fonction du temps pour plusieurs termes source

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 important³. 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 récipient⁴ 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 donc 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

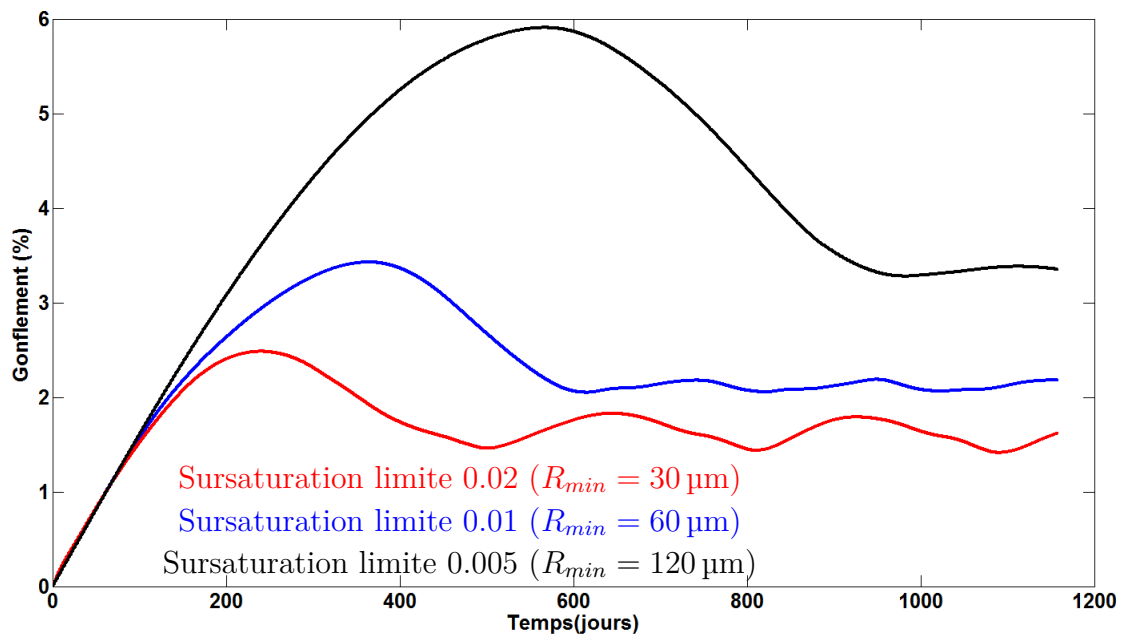


FIGURE 4.23 – Évolution du gonflement en fonction du temps pour différentes sursaturations limites dans le cas de germination seuil

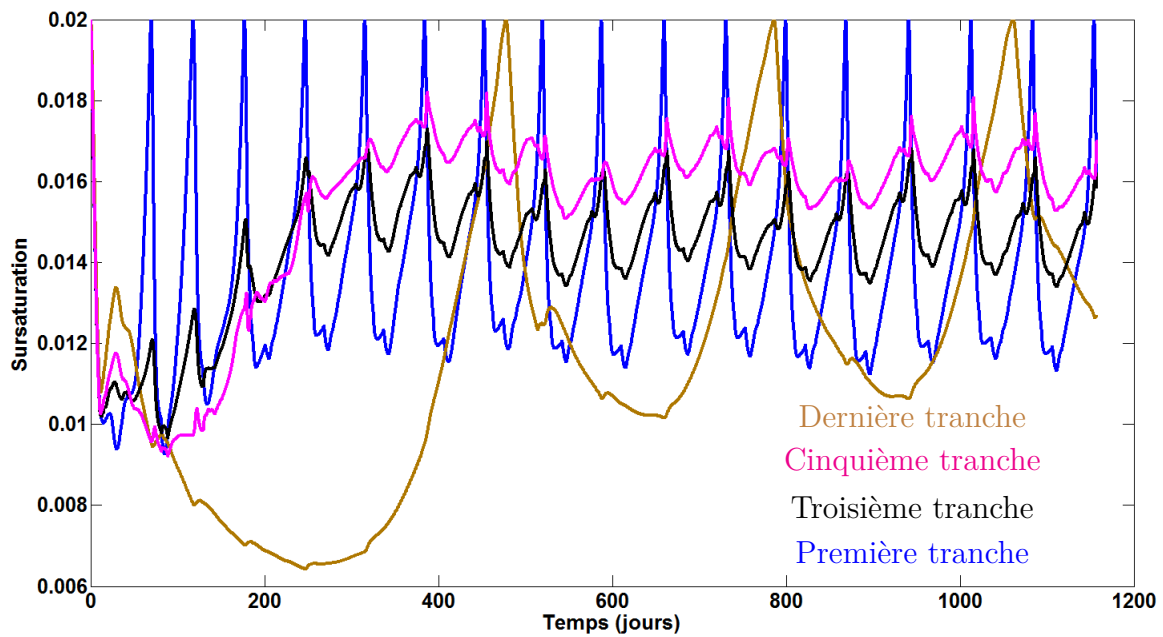


FIGURE 4.24 – Évolution de la sursaturation en fonction du temps dans plusieurs tranches de l'échantillon pour un maillage vertical à 20 nœuds et une sursaturation limite 0,02

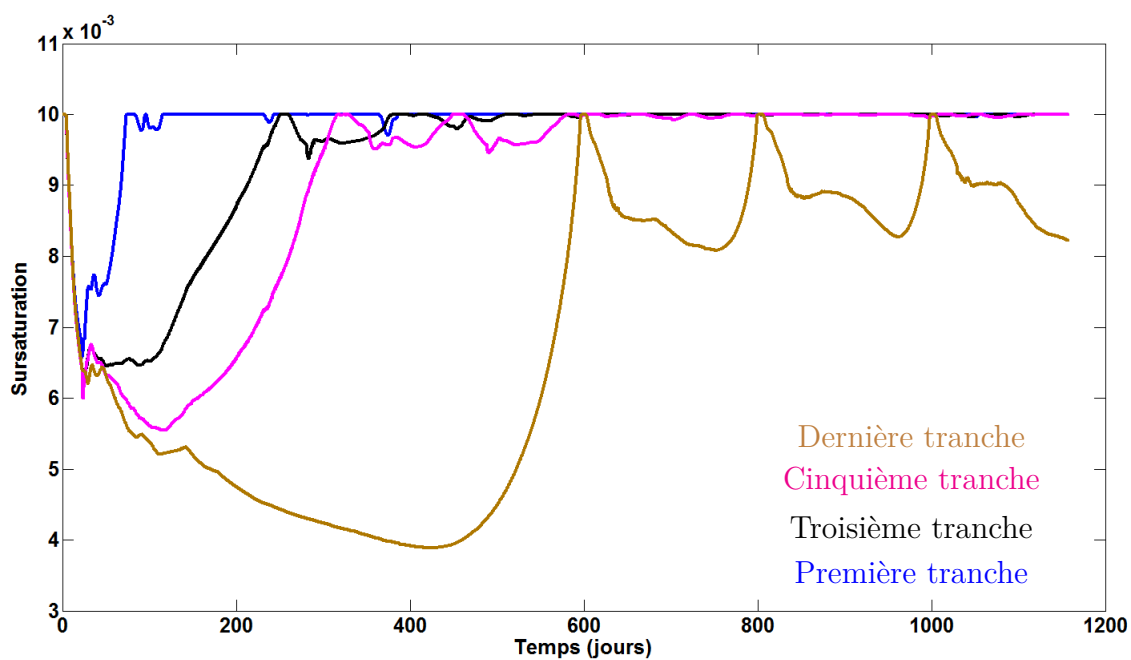


FIGURE 4.25 – Évolution de la sursaturation en fonction du temps dans plusieurs tranches de l'échantillon pour un maillage vertical à 20 nœuds et une sursaturation limite 0,01

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.

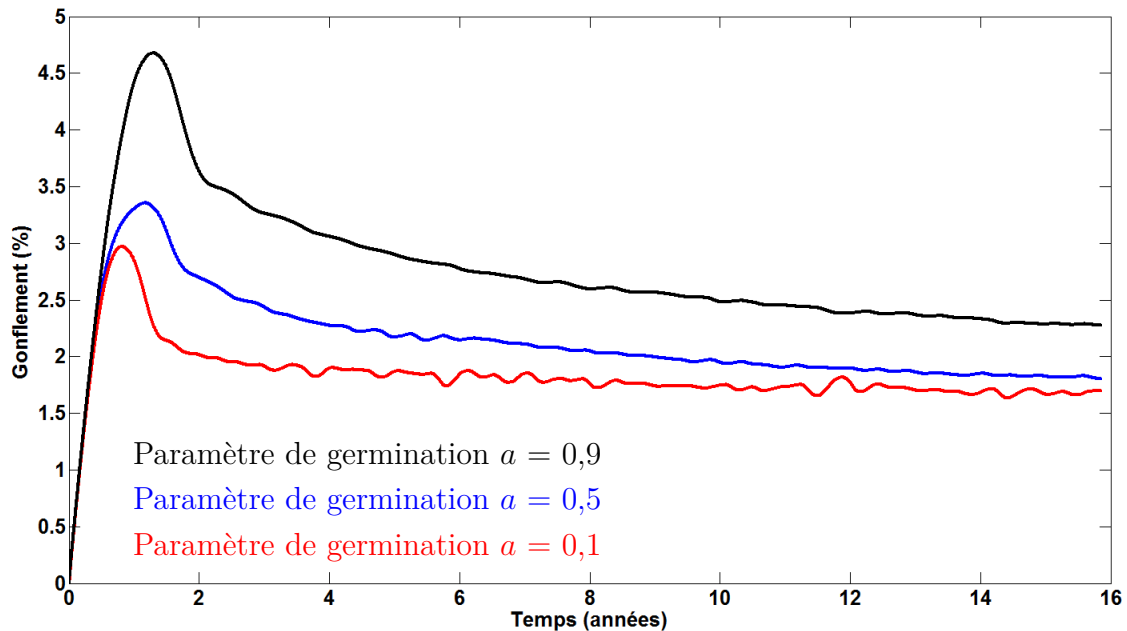


FIGURE 4.26 – Évolution du gonflement macroscopique en fonction du temps pour plusieurs paramètres de germination dans le cas d'une germination continue

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.

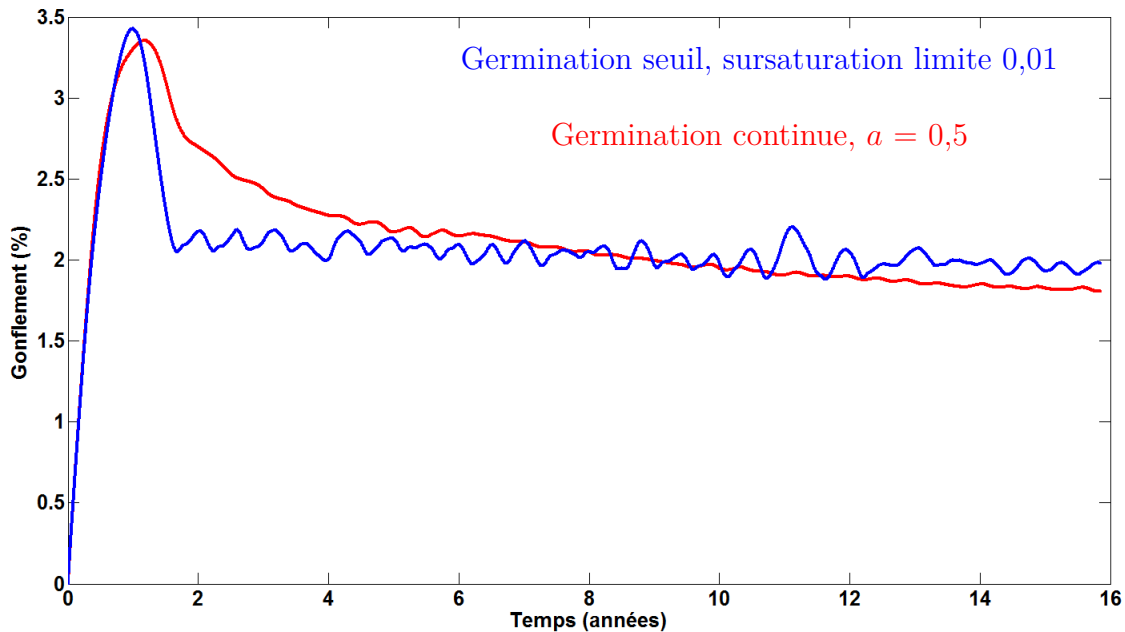


FIGURE 4.27 – Évolution du gonflement macroscopique en fonction du temps pour les deux modélisations de la germination

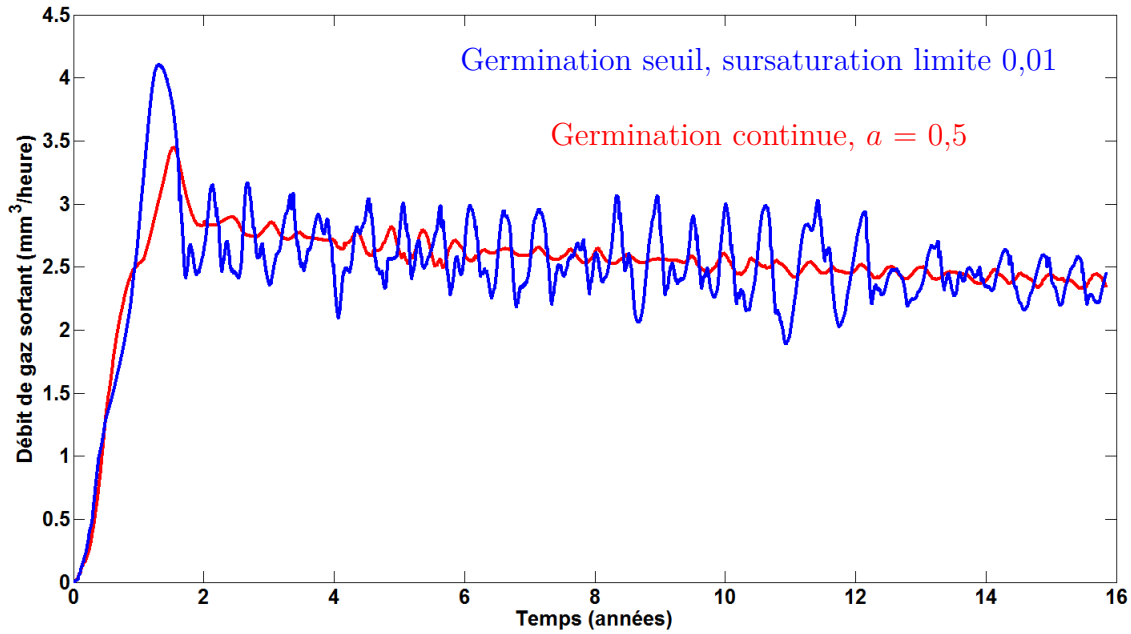


FIGURE 4.28 – Évolution du débit de gaz sortant en fonction du temps pour les deux modélisations de la germination

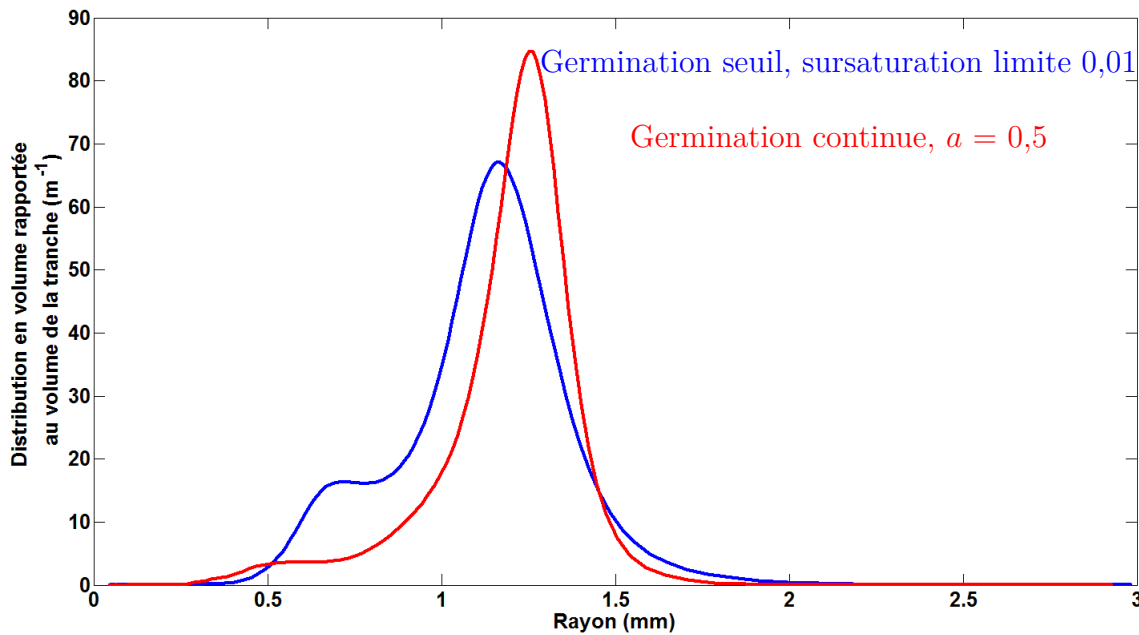


FIGURE 4.29 – Distributions en volume des populations en haut du récipient en régime stationnaire (au bout de 16 ans) pour les deux modélisations de la germination

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 faisons 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.

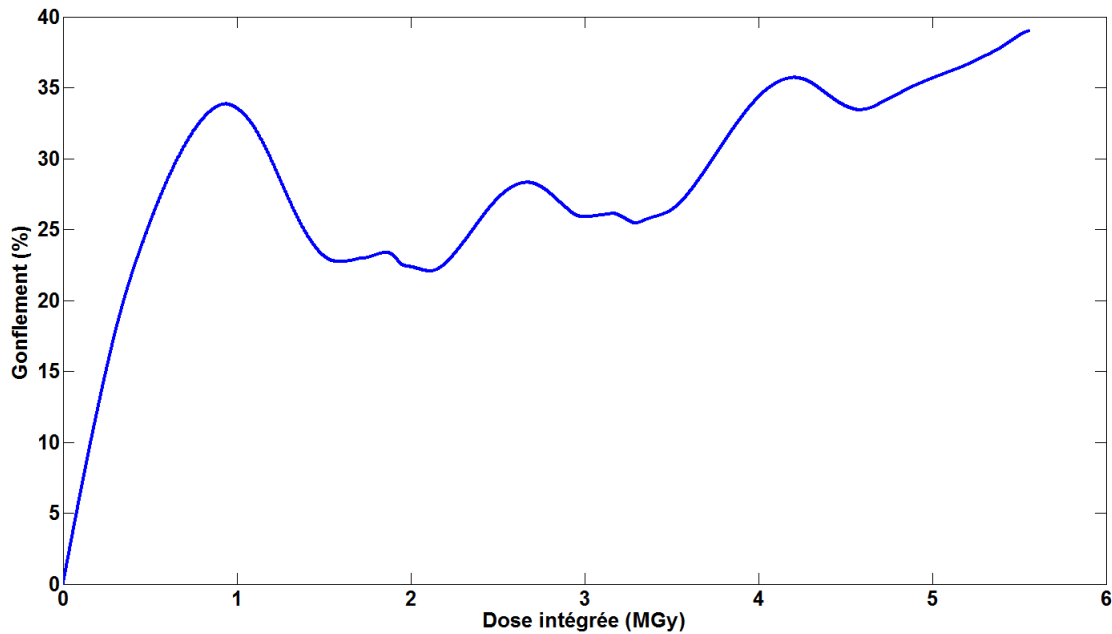


FIGURE 4.30 – Modélisation de l'évolution du gonflement en fonction de la dose intégrée pour un débit de dose de 100 Gy/h

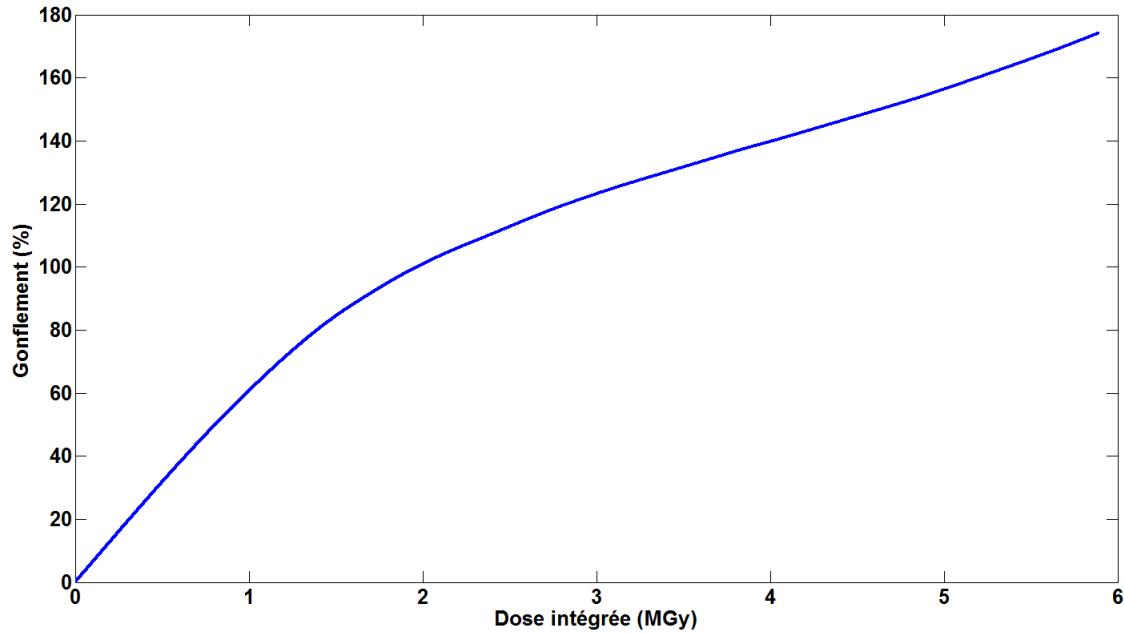


FIGURE 4.31 – Modélisation de l'évolution du gonflement en fonction de la dose intégrée pour un débit de dose de 400 Gy/h

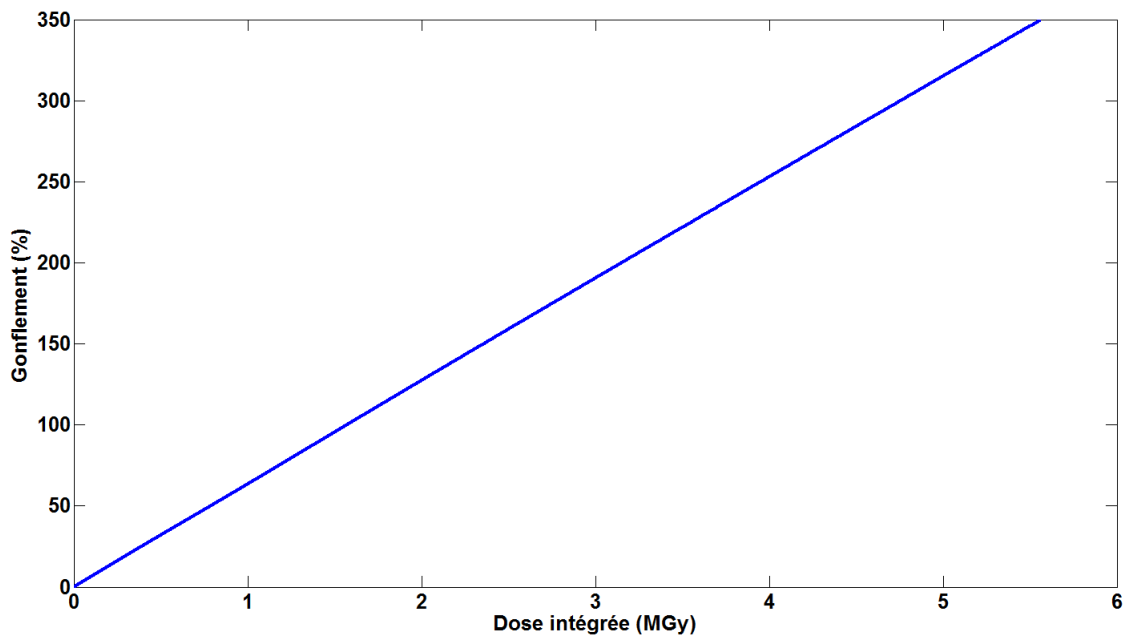


FIGURE 4.32 – Modélisation de l'évolution du gonflement en fonction de la dose intégrée pour un débit de dose de 5000 Gy/h

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.

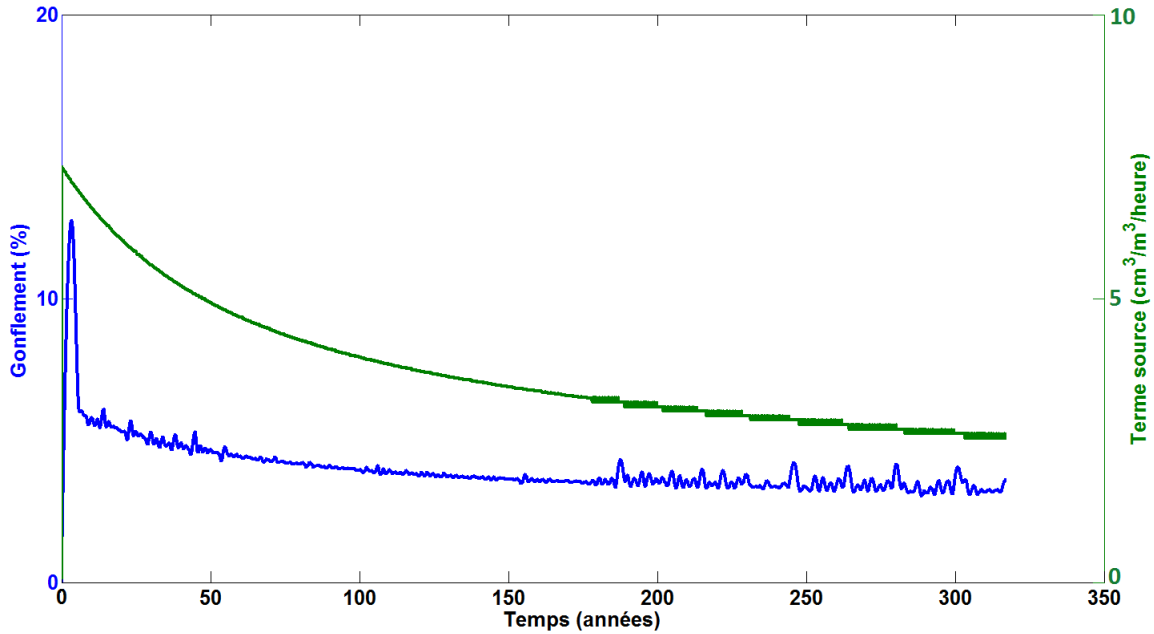


FIGURE 4.33 – Évolution du gonflement en fonction du temps pour un colis de référence