

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} ($\text{kg m}^{-3} \text{s}^{-1}$) 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 (kg m^{-3}) est donnée par la loi de Henry : $c_s = Hp_\infty$, où H ($\text{m}^2 \text{s}^{-2}$) 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 (\mathbf{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) :

$$\mathbf{v} = (u(r, t), 0, 0) \quad (2.1)$$

Il vérifie dans le cas incompressible :

$$\nabla \cdot \mathbf{v} = 0 \iff \frac{1}{r^2} \frac{\partial(r^2 u(r, t))}{\partial r} = 0 \quad (2.2)$$

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 :

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

Ce qui induit un gradient de vitesse :

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

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 :

$$\nabla \cdot \boldsymbol{\sigma} = \rho \left(\frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + \mathbf{v} \nabla \mathbf{v} \right) - \mathbf{f}_e \quad (2.5)$$

Les efforts extérieurs (\mathbf{f}_e) s'appliquant sur le fluide s'annulent et le terme d'inertie peut être négligé dans notre cas car le nombre de Reynolds¹ 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 $R(t) \ll 1$ m, ce qui implique également $\dot{R}(t) \ll 1$ m s⁻¹

$$-\nabla p + \nabla \cdot \boldsymbol{\tau} = 0 \quad (2.6)$$

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

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

$$\tau_{rr} + \tau_{\theta\theta} + \tau_{\phi\phi} = \tau_{rr} + 2\tau_{\theta\theta} = 0 \iff \tau_{rr} = -2\tau_{\theta\theta} \quad (2.8)$$

L'équation (2.7) revient alors à :

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

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

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) :

$$p(r) = p_\infty \quad (2.11)$$

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 :

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

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

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

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 :

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

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

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

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

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

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

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

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 :

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

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

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

$$\nabla \cdot (c(r, t)\mathbf{v}) = \mathbf{v} \cdot \nabla (c(r, t)) \quad (2.24)$$

On a donc

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

L'hypothèse d'une diffusion isotrope et constante :

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

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

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

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 ($\text{m}^3 \text{m}^{-3}$) : $c_R = \rho_{gi}S_o$) est donné par le bilan de masse dans la bulle :

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

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 considérerons, 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 :

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

On peut trouver une solution approchée de l'équation (2.30) en supposant $\bar{c}(t)$ 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 :

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

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

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

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 négligées² dans l'équation d'équilibre mécanique (2.14). On peut alors estimer la concentration $c_R(t)$ à l'interface de la bulle :

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

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 :

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

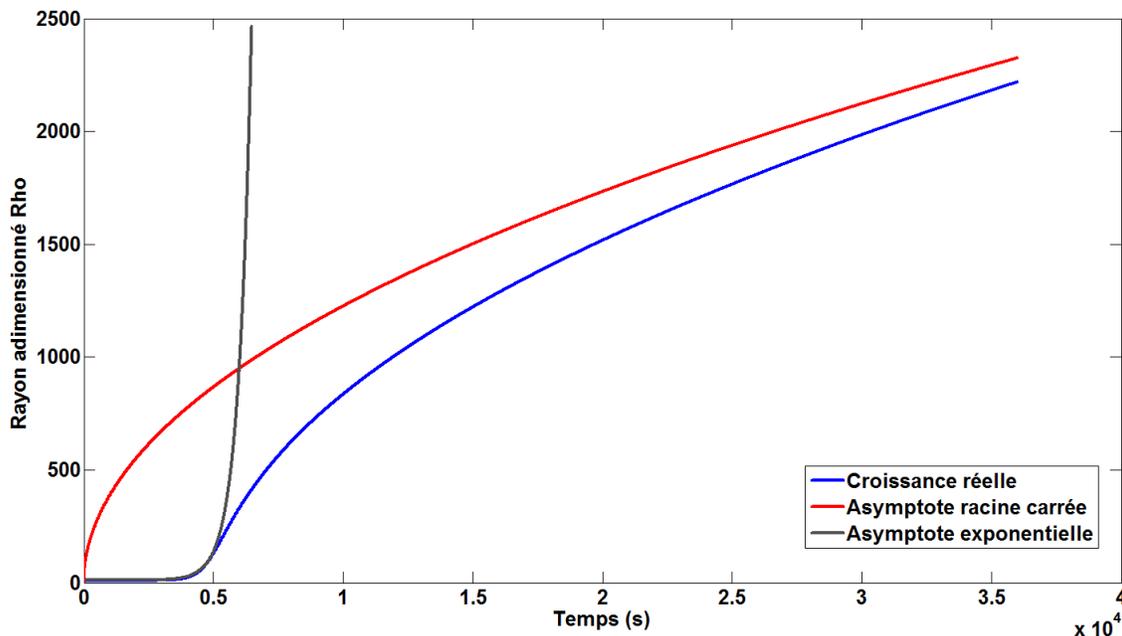


FIGURE 2.1 – Croissance d'une bulle isolée et asymptotes

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 :

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

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

Vérifions que l'hypothèse $(\bar{c}/c_R) - 1 < 1$ 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 $T_{sm} t_r = 1,3 \text{ g m}^{-3}$, ce qui représente environ 48% de la concentration à saturation $c_s = 2,7 \text{ g m}^{-3}$. La variation de concentration durant le temps t_r induit donc une erreur raisonnable sur l'hypothèse : $(\bar{c}/c_R) - 1 < 1$. 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 :

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

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 :

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

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 ($\bar{R}^3 = K_{LSW}t$) 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 mûrissement [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 $\bar{R}^3 = K_{LSW}t$ 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 source³ 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 $\bar{R}^3 = K_{LSW}t$, 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 $\bar{R}^{3/2} = K_{LSW}t$ [40]. Pour de faibles nombres de Peclet, l'évolution du rayon moyen varie entre $\bar{R}^{3/2} = K_{LSW}t$ et $\bar{R}^3 = K_{LSW}t$ [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 :

$$\begin{aligned} \frac{1 + \varepsilon}{1 + \frac{1}{\tilde{R}}} &> 1 \\ \Rightarrow \tilde{R} &> \frac{1}{\varepsilon} \iff R > \frac{2H\gamma}{\bar{c} - c_s} \end{aligned} \quad (2.40)$$

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.

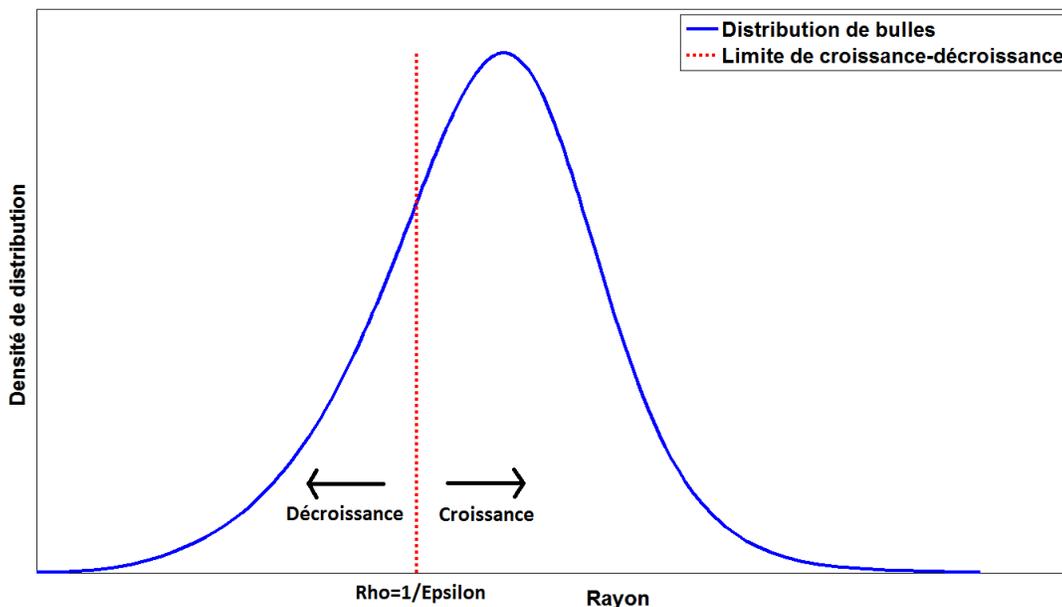


FIGURE 2.2 – Illustration du mûrissement d'Ostwald : rayon limite de croissance dans le cas d'une population de bulles

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 supposons 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 $m^{-1} m^{-3}$), cette équation s'écrit alors :

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

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 ($\text{m}^{-1} \text{m}^{-3} \text{s}^{-1}$) 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 global⁴ 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 :

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

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 ($\text{kg m}^{-3} \text{s}^{-1}$), 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) :

$$V_z = \frac{(\rho_{bitume} - \rho_{gi}) g R^2}{3\eta} \quad (2.43)$$

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

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

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

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

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

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

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) :

$$s_i = \frac{s_R}{S_o} = \frac{1 + \frac{1}{\tilde{R}}}{S_o} \quad (2.37)$$

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 paraît 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

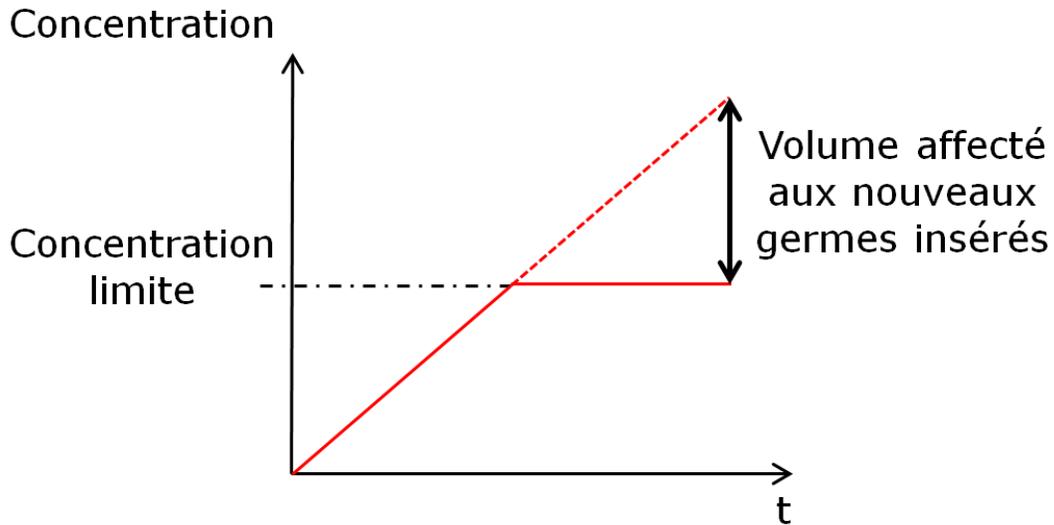


FIGURE 2.3 – Germination seuil

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.

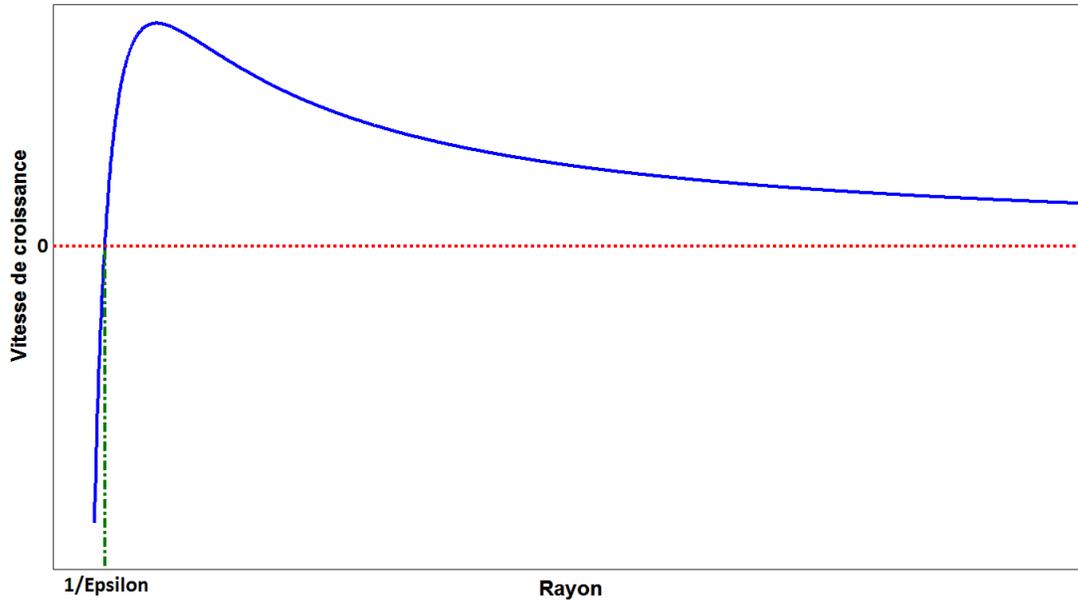


FIGURE 2.4 – Vitesse de croissance des bulles en fonction de leur taille

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

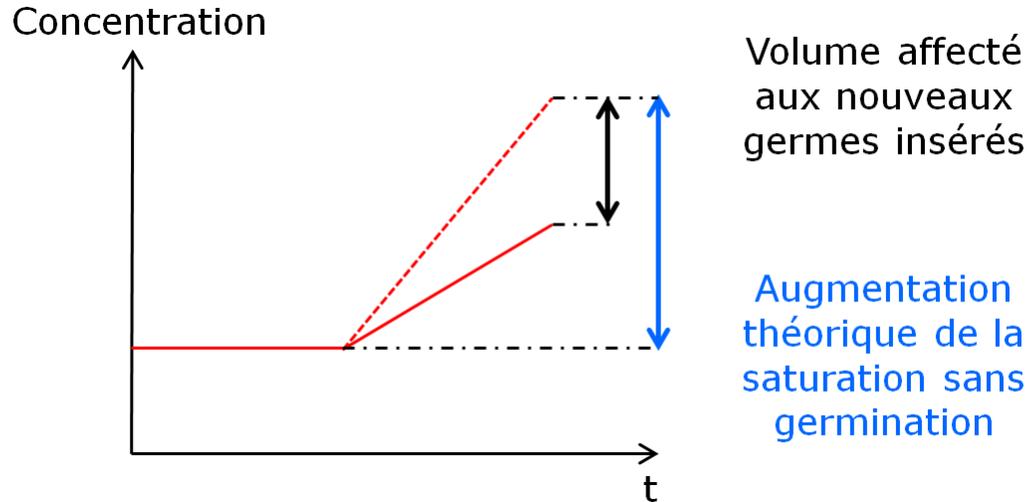


FIGURE 2.5 – Germination continue

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

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 $\text{m}^{-1} \text{ m}^{-3} \text{ s}^{-1}$), 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) :

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

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

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

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 :

$$\phi = \frac{4\pi}{3} N R^3 \quad (2.50)$$

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

$$\dot{R} \simeq \frac{S_o D \varepsilon}{R} \quad (2.51)$$

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 ($\text{m}^3 \text{s}^{-1} \text{m}^{-3}$) (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 $V_z = (\Delta \rho g R^2)/(3\eta) = k_v R^2$:

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

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

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

Nous supposons 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 :

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

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

$$= T_{sv} - 3 \frac{\phi}{R} \dot{R} - t_g \quad (2.57)$$

On doit donc résoudre le système suivant :

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

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 :

$$\dot{\varepsilon} = \dot{\phi} = t_g = 0 \quad (2.59)$$

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

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

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

$$\frac{\phi}{R} = \frac{RT_{sv}}{3S_oD\varepsilon} \quad (2.61)$$

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

$$k_v R^3 \frac{\partial}{\partial Z} \left(\frac{RT_{sv}}{3S_oD\varepsilon} \right) = T_{sv} \implies \frac{\partial}{\partial Z} \left(\frac{R}{\varepsilon} \right) = \frac{3S_oD}{k_v R^3} \quad (2.62)$$

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

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

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 ($R \gg R_\varepsilon$), 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 ($(\partial R/\partial Z)h_t \ll R$). 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 :

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

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) :

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

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

$$V_r = T_{sv} Sh_t \Delta t \quad (2.66)$$

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

$$\frac{\Delta\rho g\phi SR^2}{3\eta}\Delta t = \frac{3\phi Sh_t S_o D\varepsilon}{R^2}\Delta t \quad (2.67)$$

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

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

$$\frac{3\phi Sh_t S_o D\varepsilon}{R^2}\Delta t = T_{sv} Sh_t \Delta t \quad (2.69)$$

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

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

$$T_{sv} Sh_t \Delta t = \frac{\Delta\rho g\phi SR^2}{3\eta}\Delta t \quad (2.71)$$

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

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 :

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

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 :

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

Cette condition impliquerait un terme source $T_{sv} = 2,2 \times 10^{-9} \text{ m}^3 \text{ m}^{-3} \text{ s}^{-1}$ 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 :

$$D_d = D \nabla c S \quad (2.75)$$

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 :

$$Q_r = T_{sm}h_fS \quad (2.76)$$

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

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

$$T_{sm}h_fS = D\nabla cS \quad (2.77)$$

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

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

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 $c_0 = 1,4 \text{ kg m}^{-3}$. Cette valeur de concentration est bien supérieure à la concentration à saturation c_s du dihydrogène dans le bitume ($2,7 \text{ g m}^{-3}$) 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.