

**Thèse de l'Ecole Nationale des Ponts et Chaussées**

Spécialité :

**Matériaux et Structures**

présentée par

**Djaouida NADJI**

pour obtenir le titre de

**Docteur de l'Ecole Nationale des Ponts et Chaussées**

Sujet de thèse :

**Colmatage d'un milieu modèle par une suspension  
d'argile : application au colmatage des chaussées poreuses**

Soutenue le 25 juin 1998 devant le jury composé de :

Messieurs	Laurent LIMAT	Rapporteur
	Henry VAN DAMME	Président, Rapporteur
	Jean BILLARD	Directeur de thèse
	Joël BILLIOTTE	Examineur
	Claude GAUTHIER	Examineur
	George RAIMBAULT	Examineur

## Remerciements

Je voudrais en premier lieu témoigner ma reconnaissance à Monsieur Jean Billard, Professeur honoraire des Universités (Collège de France), qui a assuré la direction de ma thèse.

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude au Professeur Henri Van Damme et à Monsieur Laurent Limat pour avoir accepté d'être les rapporteurs de ma thèse. Je remercie Monsieur Joël Billiotte et Monsieur George Raimbault pour leur participation à mon jury en tant qu'examineurs.

Je tiens aussi à remercier Monsieur Michel Frémond, Directeur du Laboratoire des Matériaux et des Structures du Génie Civil, Unité Mixte de Recherche du LCPC et du CNRS, qui m'a accueillie au LMSGC au sein de la section Physique des Milieux Granulaires et Poreux (PMGP).

Je remercie vivement Claude Gauthier qui a guidé mes premiers pas dans le domaine de la recherche expérimentale. Ses conseils judicieux, sa clairvoyance et son soutien scientifique et moral ont été très précieux pour le bon déroulement de ma thèse.

Je tiens tout particulièrement à dire à François Chevoir, chef de la section PMGP, combien son aide, sa rigueur scientifique et ses grandes qualités humaines ont été déterminantes pour le bon avancement de cette thèse. Je lui adresse ici toute ma reconnaissance.

L'enthousiasme et les développements théoriques de Philippe Coussot concernant la partie sur le séchage des suspensions colloïdales dans les dièdres ont été très appréciés. Je lui suis très reconnaissante pour l'accueil bienveillant qu'il a réservé à ce travail.

Je remercie tout particulièrement Yves Berthaud, Directeur adjoint du LMSGC, pour ses conseils et ses idées remarquables qui ont permis au chapitre consacré au comportement mécanique des échantillons d'exister.

Les montages expérimentaux n'auraient pas pu être mis au point sans l'aide et la compétence de Jean-Claude Borgotti et Philippe Vié. Je tiens à les remercier pour leur collaboration et pour toute leur gentillesse et leur sympathie.

Je voudrais exprimer toute ma gratitude aux membres de mon comité de suivi composé de Messieurs Y. Brosseau, T. Chaussadent, M. Legret, G. Raimbault, C. Stéfani, C. Such, pour tout l'intérêt qu'ils ont porté à ma thèse, leurs suggestions pertinentes et leur disponibilité.

J'exprime ma profonde gratitude et ma grande estime à mes amis Catherine Cholet et Guillaume Gay avec qui j'ai pu partager des moments particulièrement sympathiques au sein du laboratoire. Bien sûr, je n'oublie pas de remercier tous les autres membres du laboratoire que je n'ai pas cités pour leur gentillesse et leur compréhension.

# Résumé

L'objectif de cette thèse est d'apporter un éclairage sur le phénomène de colmatage d'une chaussée drainante. Ainsi, nous avons mis au point un dispositif expérimental destiné à tester l'hypothèse selon laquelle ce phénomène serait dû à l'effet combiné d'apports en particules colloïdales (bentonite brute et bentonite-bitume) et de cycles d'imbibition-séchage. Nous avons étudié l'évolution de la perméabilité et de la cohésion d'un milieu granulaire modèle lors de l'application de ces cycles.

Nous avons montré que la chute de perméabilité se fait globalement de façon linéaire en fonction des cycles d'imbibition. De plus, nous avons constaté que l'évolution du colmatage est plus rapide dans le cas des particules argile-bitume que dans le cas des particules de bentonite brute. En effet, au cours de l'écoulement, tandis que les particules d'argile pure traversent l'empilement sans y adhérer, les particules argile-bitume interagissent par rétention avec les grains du milieu poreux. Nous avons aussi mis en évidence le phénomène de migration des colloïdes à la surface libre de l'échantillon au cours des cycles de séchage. La répétition de ce phénomène conduit à des échantillons hétérogènes se composant de deux parties distinctes : une partie consolidée (croûte) proche de la surface de séchage et une partie plus friable constituant le reste de l'échantillon. La mesure des paramètres mécaniques montre que de faibles teneurs en argile dans les croûtes peuvent générer des valeurs importantes du module d'élasticité et de la résistance à la rupture.

Par ailleurs, nous avons pu montrer, grâce aux observations microscopiques, que la cohésion du milieu est due à l'apparition de deux types de structures entre les grains du milieu poreux : le "ciment argileux" et les "voiles et ponts". Nous avons appelé "ciment argileux" l'amas argileux résultant de la superposition, au cours de la répétition des cycles imbibition-séchage, des membranes planes, perpendiculaires à la direction de l'évaporation et situées dans les pores formés par les grains. Nous avons désigné par "voiles et ponts" les structures argileuses créées aux points de contacts entre les grains.

# Abstract

The objective of this thesis is to provide an insight into the phenomenon of porous asphalt clogging. An experimental device has been built in order to test the hypothesis that this phenomenon is caused by the combined effects of a supply of colloidal suspension (clay and clay-bitumen particles) and the cycle of hydration-drying of the granular porous sample. Therefore, the evolution of the permeability and the cohesion of a model porous media, subject to these cycles, have been studied.

We have shown that the permeability versus the hydration cycle number decreases linearly. Moreover, we have noticed that the evolution of clogging in the case of the clay-bitumen particles is quicker than in the case of suspension of bentonite particles. In fact, during the suspension flow, the clay particles pass through the granular pack without any retention. Whereas, the clay-bitumen particles are retained on the grains of the porous medium. A phenomenon of colloidal migration from the bulk to the surface evaporation during the cycle of deshydration has also been noticed. The repetition of this phenomenon leads to a heterogeneous sample composed of two parts: the solid part (crust) near to the surface evaporation and the crumbly part which constitute the bulk of the granular pack. The mechanical measurements have shown that a small quantity of clay within the crust part is enough to generate important values of Young's modulus and yield stress.

By microscopic observations, we have shown that the cohesion of the sample is due to two types of clay structure: the "cement" and the "veils and bridges". We have called "cement" the clay pile resulting from the superposition of the plane membranes which are perpendicular to the direction of evaporation and are situated in the pores formed by the grains. We have designed by "veils and bridges" the clay structures created at the contact point between grains.

# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>7</b>
<b>1 Le colmatage des milieux poreux modèles</b>	<b>11</b>
1.1 Introduction . . . . .	11
1.2 Différents types de filtration . . . . .	12
1.2.1 Filtration moyenne . . . . .	12
1.2.2 Filtration à écoulement transverse . . . . .	12
1.2.3 Filtration avec formation de gâteau . . . . .	13
1.2.4 Filtration en profondeur . . . . .	13
1.3 Mécanismes de la filtration en profondeur . . . . .	15
1.3.1 Forces hydrodynamiques et mécaniques . . . . .	15
1.3.2 Forces physico-chimiques . . . . .	16
1.4 Mécanismes de capture . . . . .	17
1.4.1 Blocage d'une particule dans un volume mort . . . . .	17
1.4.2 Interception d'une particule sur un collecteur . . . . .	18
1.4.3 Entraînement d'une particule par sédimentation . . . . .	18
1.4.4 Diffusion brownienne . . . . .	19
1.4.5 Déposition due aux forces électrostatiques . . . . .	19
1.4.6 Constriction . . . . .	19
1.5 Expériences sur la filtration en profondeur . . . . .	20
1.5.1 Filtration mécanique . . . . .	21
1.5.2 Filtration physico-chimique . . . . .	22
1.6 Effets des colloïdes argileux sur la perméabilité . . . . .	24
1.6.1 Percolation de suspensions argileuses . . . . .	24
1.6.2 Influence des cycles de séchage . . . . .	24
1.7 Processus de décolmatage . . . . .	27
1.7.1 Décolmatage spontané . . . . .	27
1.7.2 Décolmatage par application de forces extérieures . . . . .	28
1.8 Conclusions . . . . .	28
<b>2 Protocole expérimental</b>	<b>31</b>
2.1 Introduction . . . . .	31
2.2 Milieu modèle . . . . .	33

2.2.1	Choix du milieu poreux . . . . .	33
2.2.2	Comparaison des courbes de succion . . . . .	34
2.2.3	Caractérisation du milieu poreux . . . . .	39
2.2.4	Porosité du milieu modèle . . . . .	39
2.2.5	Valeur au bleu des billes de verre . . . . .	40
2.3	Les colloïdes de bentonite . . . . .	41
2.3.1	Introduction . . . . .	41
2.3.2	Caractérisation des particules colloïdales de la bentonite . . . . .	41
2.3.3	Analyse aux rayons x . . . . .	41
2.3.4	Courbe granulométrique de la bentonite brute . . . . .	41
2.3.5	Valeur au bleu de la bentonite . . . . .	42
2.3.6	Surface spécifique et capacité d'échange cationique (C.E.C) . . . . .	42
2.3.7	Suspension colloïdale de bentonite à 1 g/l . . . . .	43
2.4	Description du dispositif expérimental . . . . .	44
2.4.1	Préparation des échantillons . . . . .	44
2.4.2	Imbibition . . . . .	46
2.4.3	Séchage . . . . .	46
2.4.4	Découpage de l'échantillon . . . . .	47
2.5	Conclusions . . . . .	49
<b>3</b>	<b>Comportement de suspensions de bentonite dans un milieu poreux modèle</b>	<b>51</b>
3.1	Introduction . . . . .	51
3.2	Distribution de colloïdes dans le milieu poreux au premier cycle d'imbibition-séchage . . . . .	52
3.2.1	Courbe d'effluent . . . . .	52
3.2.2	Distribution des colloïdes à l'état humide . . . . .	53
3.2.3	Distribution des colloïdes après séchage à l'air . . . . .	54
3.2.4	Distribution des colloïdes après séchage à l'étuve au premier cycle . . . . .	56
3.2.5	Suivi du séchage au banc gamma . . . . .	57
3.2.6	Suivi du séchage dans une monocouche de billes macroscopiques . . . . .	63
3.2.7	Synthèse des résultats . . . . .	64
3.3	Influence de la concentration sur la distribution des colloïdes dans le milieu poreux . . . . .	66
3.3.1	Distribution de la suspension à 0,1 g/l . . . . .	66
3.3.2	Distribution de la suspension à 2,5 g/l . . . . .	67
3.3.3	Distribution de la suspension à 10 g/l . . . . .	68
3.3.4	Synthèse des résultats . . . . .	69
3.4	Second cycle . . . . .	71
3.4.1	Courbe d'effluent . . . . .	71
3.4.2	Distribution des colloïdes après réimbibition . . . . .	72

3.4.3	Distribution des colloïdes après un second séchage à l'étuve	73
3.5	Cycles suivants d'imbibition-séchage	73
3.6	Variation de la perméabilité	76
3.7	Conclusions	80
<b>4</b>	<b>Morphologie des dépôts</b>	<b>83</b>
4.1	Introduction	83
4.2	Revue des précédents travaux	84
4.3	Forme microscopique des dépôts après séchage de la suspension dans l'empilement	85
4.3.1	Observation des croûtes de billes	85
4.3.2	Ponts et voiles d'argile dans la masse	90
4.4	Etude microscopique du séchage de la suspension dans l'empilement poreux	91
4.5	Séchage d'une suspension colloïdale dans un système sphères-plan	93
4.6	Séchage de la suspension colloïdale de bentonite dans un dièdre	97
4.6.1	Préparation du système	97
4.6.2	Résultats des observations	98
4.6.3	Influence de la concentration	98
4.7	Interprétation physique du processus de séchage	98
4.7.1	Séchage dans le dièdre	102
4.7.2	Séchage entre deux sphères	104
4.8	Conclusion	104
<b>5</b>	<b>Etude de paramètres mécaniques</b>	<b>107</b>
5.1	Introduction	107
5.2	Présentation du dispositif expérimental	108
5.3	Validation de l'essai	108
5.3.1	Essai sur feuillard d'acier	108
5.3.2	Calcul par éléments finis	110
5.4	Application de l'essai aux croûtes de billes	111
5.5	Conclusion	116
<b>6</b>	<b>Colmatage par des suspensions argile-bitume</b>	<b>117</b>
6.1	Introduction	117
6.2	Interaction colloïdes organiques-argiles	119
6.3	Mode de préparation	120
6.4	Etude comparative	123
6.4.1	Courbes granulométriques	123
6.4.2	Observations de films d'argiles au microscope	124
6.4.3	Valeur au bleu	126
6.5	Distributions des colloïdes à 10 % de bitume	128
6.5.1	Premier cycle	130

6.5.2	Distribution des colloïdes dans le massif poreux au second cycle . . . . .	132
6.6	Variation de la perméabilité . . . . .	133
6.7	Morphologies des dépôts . . . . .	134
6.8	Conclusion . . . . .	134
<b>Conclusion</b>		<b>139</b>
<b>Bibliographie</b>		<b>145</b>
<b>Annexes</b>		<b>155</b>
<b>A</b>	<b>Les chaussées poreuses</b>	<b>155</b>
A.1	Introduction . . . . .	155
A.2	Structures poreuses routières . . . . .	155
A.3	Enrobés drainants minces . . . . .	156
A.3.1	Description et formulation . . . . .	157
A.3.2	Perméabilité . . . . .	158
A.4	Chaussées poreuses urbaines (CPU) . . . . .	158
A.4.1	Description . . . . .	159
A.4.2	Qualité acoustique . . . . .	160
<b>B</b>	<b>Etat des connaissances sur le colmatage des enrobés drainants</b>	<b>161</b>
B.1	Introduction . . . . .	161
B.2	Connaissances actuelles sur le colmatage . . . . .	161
B.3	Facteurs influençant le colmatage . . . . .	162
B.4	Caractérisation des colmatants . . . . .	164
B.4.1	La distribution granulométrique . . . . .	165
B.4.2	Minéralogie des colmatants . . . . .	165
B.5	Entretien des enrobés drainants . . . . .	167
<b>C</b>	<b>Les argiles</b>	<b>169</b>
C.1	Définitions . . . . .	169
C.1.1	Définition granulométrique . . . . .	169
C.1.2	Définition minéralogique . . . . .	169
C.1.3	Groupe de la kaolinite . . . . .	170
C.1.4	Groupe des argiles micacées . . . . .	170
C.1.5	Groupe des smectites . . . . .	171
C.1.6	Argiles fibreuses (tab. C.4) . . . . .	171
C.2	Propriétés des argiles . . . . .	171
C.2.1	Capacité d'échange cationique (C.E.C.) . . . . .	172
C.2.2	Formation de la double couche . . . . .	172
C.2.3	Epaisseur de la double couche . . . . .	173
C.2.4	Potentiel zéta ( $\zeta$ ) . . . . .	173

---

C.2.5	Surface spécifique . . . . .	174
C.3	Identification des argiles . . . . .	175
C.3.1	Mesure du potentiel zéta . . . . .	175
C.3.2	Mesure de la capacité d'échange cationique (C.E.C.) . . . . .	176
C.3.3	Mesure de la surface spécifique par physisorption (la méthode B.E.T) . . . . .	176
C.3.4	Mesure de la surface spécifique par chimisorption . . . . .	176
<b>D</b>	<b>L'essai au bleu de méthylène</b>	<b>177</b>
D.1	Introduction . . . . .	177
D.2	Propriétés du bleu de méthylène . . . . .	177
D.2.1	Intérêt de la méthode pour cette étude . . . . .	178
D.3	Dosage de l'argile par le bleu de méthylène . . . . .	178
D.3.1	Instruments de mesures . . . . .	180
D.3.2	Mode opératoire . . . . .	180
<b>E</b>	<b>Les mesures de densité par gammamétrie</b>	<b>183</b>
E.1	Introduction . . . . .	183
E.2	Dispositif de mesure . . . . .	184
E.3	Protocole de mesure . . . . .	184
E.4	Précision des mesures . . . . .	185
<b>F</b>	<b>Le microscope électronique à balayage environnemental</b>	<b>187</b>
<b>G</b>	<b>Comptes Rendus de l'Académie des Sciences</b>	<b>189</b>



# Introduction

L'avenir des enrobés drainants, dont les propriétés sont intéressantes pour de multiples aspects (annexe A), est conditionné par la pérennité de leurs qualités hydraulique et acoustique face au phénomène de colmatage. C'est pour cette raison que le Laboratoire Central des Ponts et Chaussées se préoccupe, depuis l'application des enrobés drainants au réseau routier français dans les années 1980, de leur mise en oeuvre et de leur décolmatage. La résolution de ce dernier problème paraît essentielle pour le développement à long terme de cette technique.

Si beaucoup de constatations de colmatage de chaussées poreuses ont été faites sur le terrain, on ne dispose que de peu d'études approfondies sur la localisation, la nature et surtout la cohésion du matériau colmatant. En effet, le diamètre des pores de la chaussée (de l'ordre du centimètre), ainsi que leur faible profondeur, ne permettent pas de collecter de façon non destructive une quantité de colmatant suffisante pour effectuer des expériences. Les principaux résultats des études antérieures sont les suivants [89] :

- la partie colmatée se situe dans les deux premiers centimètres de la chaussée ;
- le colmatant est constitué essentiellement de sable grossier, avec toutefois la présence d'une fraction fine (argile) inférieure à 2 % en masse ;
- la présence du sable explique la chute de perméabilité de la chaussée, mais pas la cohésion du sédiment colmatant observée lors des opérations de décolmatage ;
- le colmatage est plus rapide sur les voies faiblement circulées que sur les voies à fort trafic routier.

Les différentes études menées jusqu'ici pour déterminer l'origine de la cohésion du colmatant observée sur le terrain ne sont que très peu satisfaisantes (annexe B). En effet, les méthodes de récupération du sédiment colmatant ainsi que les méthodes d'analyses utilisées (granulométrie et diffraction aux rayons x) ne sont pas particulièrement adaptées pour doser les fractions fines alors qu'il serait intéressant d'étudier dans quelle mesure elles sont responsables de la cohésion du

colmatant. C'est pour cela que nous allons tenter, dans ce travail expérimental, de rechercher les mécanismes responsables de cet état de cohésion du colmatant et de l'imperméabilisation des chaussées poreuses.

Pour ce faire, et sur la base des résultats de travaux précédents, nous avons établi un protocole expérimental à partir de certaines hypothèses et observations. Nous savons que la cohésion d'un milieu granulaire ne peut se produire que s'il existe une matrice de matériaux fins assurant les liaisons entre les grains. Par ailleurs, l'imperméabilisation du milieu granulaire se produit, le plus souvent, à la suite d'infiltrations de suspensions de particules, engendrant des phénomènes de rétention et de capture au sein du milieu poreux.

Dans le cadre de ces idées, nous avons modélisé le colmatant, de nature sableuse, par un empilement micrométrique de billes de verre sans cohésion initiale. On appellera ce colmatant "colmatant primaire". Pour étudier l'apparition possible d'une cohésion et d'une imperméabilisation du colmatant primaire, nous avons mené une série d'essais d'infiltration de suspension colloïdale au travers du milieu modèle. Nous considérons cette suspension comme "un colmatant secondaire".

L'étude du mécanisme de colmatage en laboratoire est possible mais reste néanmoins très délicate car il faudrait simuler l'influence du trafic, du climat, et l'apport de matière colmatante. La prise en compte simultanée de tous ces facteurs s'avère être très difficile en pratique, particulièrement pour l'effet du trafic où il s'agit de modéliser l'action de pression-dépression des pneumatiques sur la chaussée. Dans ce travail, nous nous sommes intéressés uniquement à l'étude d'effets climatiques et de l'apport de la matière colmatante.

Après une étude bibliographique portant sur la filtration et le colmatage des milieux poreux modèles au chapitre 1, nous développerons au chapitre 2 le protocole expérimental mis au point, et nous discuterons du choix du milieu poreux modèle et des méthodes de mesures.

Au chapitre 3, l'étude de la distribution d'une suspension de colloïdes de bentonite dans le milieu poreux au cours de cycles d'imbibition et de séchage se fera par la méthode au bleu de méthylène. L'évolution de l'état de colmatage de l'échantillon est estimée à partir de mesures de perméabilité au cours de chaque cycle d'imbibition.

Au chapitre 4, l'étude de la morphologie des dépôts au sein du milieu granulaire reposera sur l'utilisation d'un microscope électronique à balayage et d'un microscope environnemental. L'objectif de ces observations est la connaissance de l'évolution des dépôts entre les grains et de l'état de cohésion de l'empilement. En effet, grâce à ces dépôts, l'état pulvérulent de l'échantillon, ou du moins une

partie de l'échantillon, se passe en un état cohésif. Pour mesurer la résistance de la partie consolidée, nous avons mis au point, comme il est décrit au chapitre 5, un essai de flexion trois points adapté à la taille de nos échantillons de billes.

Le bitume est un élément fréquemment rencontré dans les analyses des sédiments colmatants. Aussi, nous comparerons au chapitre 6 la distribution de colloïdes de bentonite pure dans le milieu poreux avec la distribution de colloïdes de bentonite enrobée de bitume, ainsi que les perméabilités et les morphologies de dépôt.

Ce travail devrait permettre une meilleure connaissance des mécanismes de colmatage des enrobés drainants. Il apportera quelques précisions sur l'évolution du processus de séchage des suspensions dans un milieu poreux. Nous espérons qu'il permettra également, à travers les résultats des essais mécaniques et de morphologie de dépôts, une évolution des méthodes de décolmatage et de nettoyage des chaussées drainantes.



# Chapitre 1

## Le colmatage des milieux poreux modèles

### 1.1 Introduction

Le colmatage des chaussées poreuses est un phénomène dû essentiellement aux dépôts par filtration de particules dans la porosité de ces structures. La chaussée joue donc le même rôle qu'un filtre soumis à des écoulements de particules. Ces dernières se déposent dans les pores de la structure. Elles peuvent provenir soit d'une arrivée de particules à l'état sec grâce à des effets éoliens, soit d'un écoulement liquide lors d'un temps pluvieux.

De par sa structure poreuse, la chaussée est un lieu privilégié pour l'accumulation de matériaux divers de tailles inférieures à celles des pores. Les particules grossières se déposent et s'organisent dans les pores de la chaussée pour former un empilement compact mais sans cohésion initiale (colmatant primaire diminuant la perméabilité globale de la structure). Un apport de particules ultrafines véhiculées par les eaux pluviales sera ensuite responsable de la cohésion de l'empilement (colmatant secondaire). Cette hypothèse est à la base de notre raisonnement pour l'élaboration d'un modèle expérimental.

L'imperméabilisation de la chaussée résulte donc de la succession de deux niveaux de filtrations :

1. une accumulation de particules grossières (sable) dans les deux premiers centimètres de la chaussée provoque une chute notable de la perméabilité. Cette étape ressemble à un phénomène de colmatage d'un filtre (i.e. la chaussée) par formation de "gâteau".
2. la seconde étape consiste en une filtration de particules ultra fines.

Chacune de ces filtrations appartient à un domaine bien défini du processus de la filtration. Tandis que le premier cas se situe dans le domaine de la filtration hy-

drodynamique et mécanique, le deuxième cas est une filtration physico-chimique avec transport de particules colloïdales.

Nous allons donc, après avoir présenté les principaux types de filtration, décrire les mécanismes régissant les phénomènes d'écoulement et de rétention de particules dans les milieux poreux au cours d'une filtration en profondeur. Nous donnerons ensuite un aperçu non exhaustif des travaux réalisés dans le domaine de la filtration en profondeur. Sur la base des résultats de certaines de ces études et moyennant quelques hypothèses, nous allons établir un protocole expérimental.

## 1.2 Différents types de filtration

La filtration est un processus dans lequel une suspension de particules passe à travers un filtre composé par un milieu poreux granulaire ou fibreux, dans le but de retenir (éliminer) les particules présentes dans le fluide. Ce dernier peut être un gaz ou un liquide.

Le transport des particules dans un milieu poreux est caractérisé par un grand nombre de paramètres :

- le filtre : la porosité, le diamètre des pores, la taille et la forme des grains,
- les particules : la concentration, la taille, la forme, la densité, et les propriétés de surface,
- les caractéristiques du fluide d'écoulement : la viscosité, la densité, la polarité,
- les caractéristiques de l'écoulement : vitesse débitante et nombre de Reynolds.

Il existe différents procédés de filtration qui sont adaptés aux différents types de produits à purifier.

### 1.2.1 Filtration moyenne

La filtration moyenne est un procédé (fig. 1.1) utilisé pour filtrer des particules de tailles supérieures à une taille donnée. Dans ce cas les pores du filtre sont plus petits que les particules à filtrer, ce qui conduit à une obturation rapide du filtre. On utilise des tamis comme filtre dans le cas de particules de diamètres supérieurs à 50  $\mu\text{m}$ . Pour les petites particules, on emploie des membranes à tailles de pores déterminées.

### 1.2.2 Filtration à écoulement transverse

La filtration à écoulement transverse (fig. 1.2) est un procédé de filtration continue, car la direction de l'écoulement de la suspension est parallèle à la surface

du milieu filtrant et le taux de cisaillement induit est tel qu'il évite le dépôt de particules dans les pores du filtre.

### 1.2.3 Filtration avec formation de gâteau

On utilise ce type de filtration dans le cas des suspensions fortement concentrées. La filtration des particules se fait en deux étapes : des particules solides s'accumulent sur la surface poreuse, puis il y a filtration à travers le paquet de particules solides. Dans ce cas, le dépôt à la surface du filtre est important et le filtre est vite colmaté.

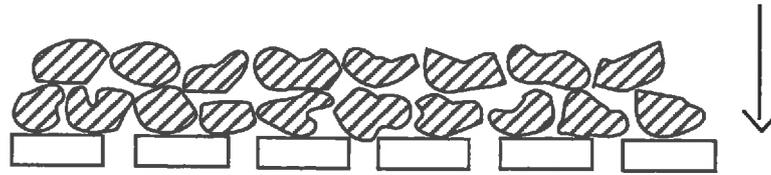
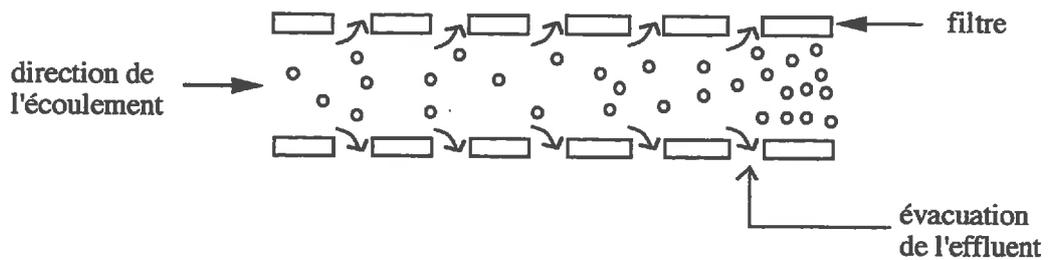
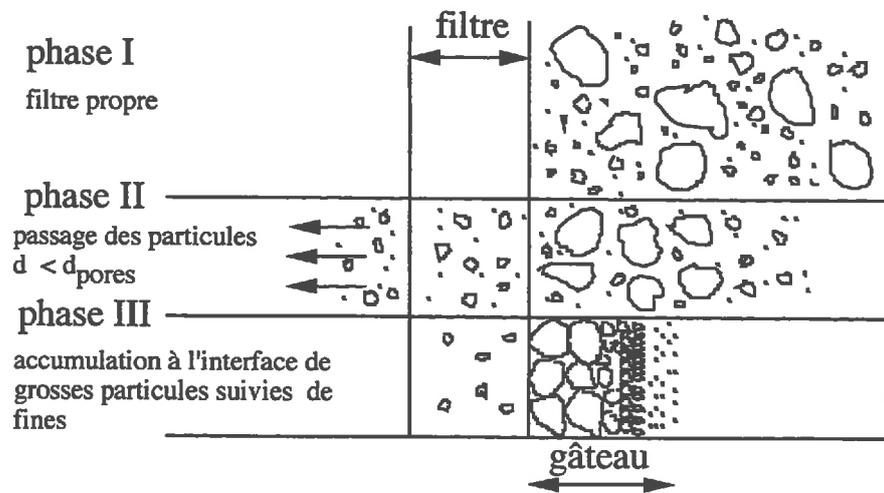
Ce même type de filtration se produit dans le domaine des sols et engendre la baisse de la perméabilité des drains. Le processus se déroule également en deux phases : il y a d'abord accumulation de particules à l'interface (fig.1.3, phase II), puis formation d'un autofiltre à l'amont du filtre (fig.1.3, phase III). La différence entre ce procédé naturel et le procédé industriel se situe dans le fait qu'il existe des particules de diamètres inférieurs à la taille des pores qui passent à travers le filtre.

### 1.2.4 Filtration en profondeur

La filtration en profondeur ou en masse est un procédé fréquemment utilisé pour séparer une phase continue d'une phase dispersée. Elle est utilisée généralement pour clarifier les suspensions de particules fines ou colloïdales ( $< 30 \mu\text{m}$ ) de concentration de l'ordre de 0,5 g/l [108]. Les particules en suspension, sous l'action de forces multiples, circulent dans le milieu et se déposent à différentes profondeurs du corps filtrant d'où le nom de filtration en profondeur.

Son application la plus courante concerne la production d'eau potable et le traitement des eaux usées. Parmi les autres domaines d'application, on peut citer les transferts de polluants dans le sol, ainsi que l'exploitation pétrolière. La conséquence logique, en raison même de la nature de la filtration, conduit inexorablement à la formation de dépôts responsables du colmatage progressif du milieu filtrant.

Dans ce travail, nous allons mener des expériences d'infiltration de suspensions colloïdale à 1 g/l dans un milieu modèle de billes de verre de tailles micrométriques. Les particules en suspension pénètrent dans le milieu poreux, le traversent, certaines peuvent y adhérer et d'autres sont récupérées à la sortie. Notre travail se situe donc dans le domaine de la filtration en profondeur et plus particulièrement dans le cas de l'écoulement et du transport de particules argileuses. Aussi, nous allons faire une synthèse non exhaustive de quelques travaux sur la filtration en profondeur.

FIG. 1.1 - *Filtration moyenne*FIG. 1.2 - *Filtration à écoulement transverse*FIG. 1.3 - *Filtration avec formation de gâteau*

## 1.3 Mécanismes de la filtration en profondeur

Le processus de filtration en masse des suspensions à travers un milieu poreux est un phénomène très complexe compte tenu de la diversité des mécanismes mis en jeu. Néanmoins, l'étude de ces mécanismes montre que le procédé de la filtration en masse se divise en deux parties où on distingue deux groupes de forces suivant la situation à considérer [52] :

- a - les forces hydrodynamiques et mécaniques ;
- b - les forces physico-chimiques.

L'importance relative de ces forces dépend de la taille caractéristique des particules à filtrer. Trois types de filtration en profondeur sont possibles :

1. La filtration ( $d_{particule} \geq 10 \mu\text{m}$ ) : où les forces hydrodynamiques et gravitationnelles sont dominantes.
2. L'ultrafiltration ( $d_{particule} \leq 0,1 \mu\text{m}$ ) : où les forces électrostatiques et de diffusion brownienne sont dominantes.
3. La micro filtration ( $0,1 \mu\text{m} < d_{particule} < 10 \mu\text{m}$ ) : où tous les phénomènes cités sont à considérer.

### 1.3.1 Forces hydrodynamiques et mécaniques

Dans le cas de la filtration hydrodynamique et mécanique, les forces à prendre en compte sont les suivantes :

**la force gravitationnelle**

**la force de traînée**

Dans le cas simple d'un fluide newtonien et d'un écoulement à faible nombre de Reynolds, la force de traînée est donnée par l'expression  $F_h = K\mu U$ , où  $K$  est un coefficient qui dépend de la taille et de la forme des particules ; il est donné par  $K = 6\pi a$  dans le cas de particules sphériques de rayon  $a$ . La viscosité relative et la vitesse relative du fluide sont désignées respectivement par  $\mu$  et  $U$ .

**la force de lubrification**

Elle est due à la résistance visqueuse du film de fluide qui glisse entre les particules et la surface solide du milieu poreux. On peut l'exprimer sous la forme  $F_v = 6\pi\mu\left(1 + \frac{a}{h}\right)aU$ , avec  $h$  la distance entre les deux surfaces solides et  $a$  le rayon de la particule.

La force de lubrification intervient lorsque l'épaisseur du film fluide est très petite devant la taille des particules et dans des conditions de faibles nombres de Reynolds.

### Les forces d'inertie

Les forces d'inertie sont définies par  $F_i = \frac{4}{3} \pi a^3 \rho_p \frac{dU}{dt}$ , où  $\rho_p$  représente la densité des particules.

L'importance relative de la force d'inertie et des forces visqueuses peut être caractérisée par le nombre de Stokes  $N_{st}$ , c'est à dire le rapport de l'énergie cinétique d'une particule et de l'énergie dépensée par la force de traînée visqueuse :

$$N_{st} = \frac{(\frac{4}{3} \pi a^3 \rho_p) U^2}{(6 \pi \mu U a) a_c}$$

Le paramètre  $a_c$  représente la longueur caractéristique du collecteur.

## 1.3.2 Forces physico-chimiques

### Les forces de Van der Waals

Les forces de Van der Waals sont des forces dues aux attractions dipole-dipole entre atomes et molécules [54]. Elles sont prédominantes à courtes distances (inférieures à 20 Å) et sont négligeables devant les forces électrostatiques à grandes distances. La force d'attraction entre une particule et la surface poreuse approximée par un système sphère-plan est donnée par l'expression  $F_{vdw} = \frac{-H a}{6 \delta^2}$ , où  $\delta$  est la distance particule-surface du milieu poreux et  $H$  la constante de Hamaker caractéristique des surfaces (elle est de l'ordre de  $10^{-19}$  J pour toutes les phases condensées).

### Les forces électrostatiques

Ces forces existent entre les particules chargées et la surface du milieu poreux, elles caractérisent différents types d'interactions :

a ) Quand les particules et le collecteur sont simultanément chargés, les forces coulombiennes d'attraction ou de répulsion interviennent.

b ) Si l'un ou l'autre est chargé, il se crée des charges résultantes électrostatiques sur les surfaces non chargées.

c ) Dans le cas des électrolytes, les particules chargées en surface immergées dans le fluide adsorbent des ions et par compensation de charges une seconde

couche, plus riche en ions de charge opposée, se forme ; on parle alors de forces électrocinétiques dues à une double couche ionique. La différence de potentiel entre l'électrolyte et la couche liée au solide est appelée potentiel zéta ( $\zeta$ ). Ce dernier caractérise les effets électrostatiques entre les particules et le lit filtrant d'une part et entre les particules d'autre part. Le potentiel zéta dépend du pH, de la force ionique de la solution et de la nature des particules et des ions.

### Les forces chimiques

Des liens chimiques peuvent se former dans le cas de particules colloïdales et d'autres types de particules.

### Les forces dues aux mouvements browniens

Les particules de tailles inférieures à  $1 \mu\text{m}$ , pour lesquelles le nombre de Péclet ( $P_e = \frac{6\pi\mu U a^2}{kT}$ ) est suffisamment faible, sont soumises à la diffusion brownienne qui superpose à leurs mouvements orientés dans l'écoulement un mouvement d'agitation aléatoire.

## 1.4 Mécanismes de capture

On rencontre dans la littérature six mécanismes de capture. Chacun est associé à un site de rétention donné :

- le blocage d'une particule dans un volume mort,
- l'interception d'une particule sur le collecteur,
- l'entraînement d'une particule par sédimentation,
- la diffusion brownienne,
- la déposition due aux forces électrostatiques,
- la constriction.

### 1.4.1 Blocage d'une particule dans un volume mort

Ce type de capture concerne les particules de diamètre supérieur à  $1 \mu\text{m}$  non soumises à des forces extérieures (forces électrostatiques, par exemple). C'est un mécanisme de capture dominant dans la filtration des aérosols.

On considère, loin d'un obstacle, que les trajectoires des particules sont confondues avec les lignes de courant (fig.1.4). A l'approche d'un grain, les lignes de courant commencent à changer de direction et contournent l'obstacle. Du fait de leur inertie, les particules voient leurs trajectoires dévier des lignes de courant et peuvent être interceptées par le collecteur puis rester bloquées dans un volume mort où le liquide ne circule pas.

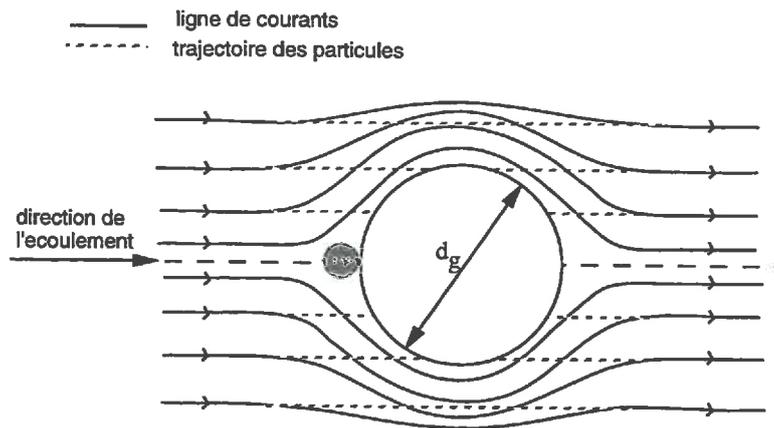


FIG. 1.4 - Blocage d'une particule dans un volume mort (Chi Tien [107])

### 1.4.2 Interception d'une particule sur un collecteur

Quand la densité du fluide n'est pas exactement la même que la densité des particules (dont la taille est inférieure à quelques micromètres), il se peut que ces dernières ne soient pas capables de suivre les lignes de courant dans les zones à faibles tortuosités (fig. 1.5). Les particules finissent par rentrer en collision avec les grains du filtre [52].

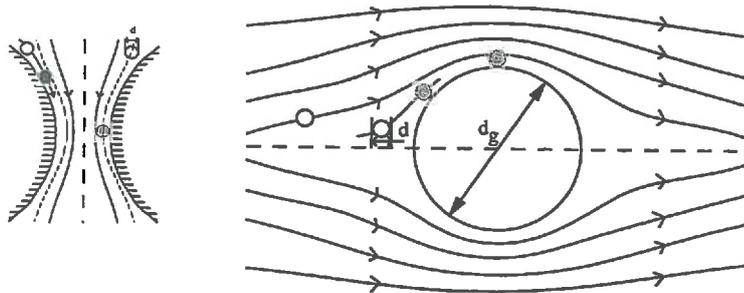


FIG. 1.5 - Interception d'une particule sur un collecteur (Chi Tien [107])

### 1.4.3 Entraînement d'une particule par sédimentation

Si la densité des particules est différente de celle du fluide porteur, la sédimentation provoque une déviation plus ou moins rapide des particules sur le milieu poreux. La vitesse de sédimentation, qui prend en compte la différence des densités  $\rho_p$  et  $\rho$ , la viscosité dynamique du fluide  $\mu$ , et le diamètre de la particule  $d_p$ , est donnée par la loi de Stokes  $V_s = \frac{g}{18\mu}(\rho_p - \rho)d_p^2$ .

### 1.4.4 Diffusion brownienne

Dans le cas des suspensions colloïdales, le mouvement brownien est un phénomène décisif pour le mouvement aléatoire des particules. Cette agitation thermique provoque la rencontre des particules avec les grains du milieu poreux et détermine ainsi le mécanisme de déposition. Le coefficient de diffusivité est donné par :  $D_p = \frac{k_b T}{3\pi\mu d_p}$  avec  $k_b$  ; la constante de Boltzman et  $T$  la température absolue.

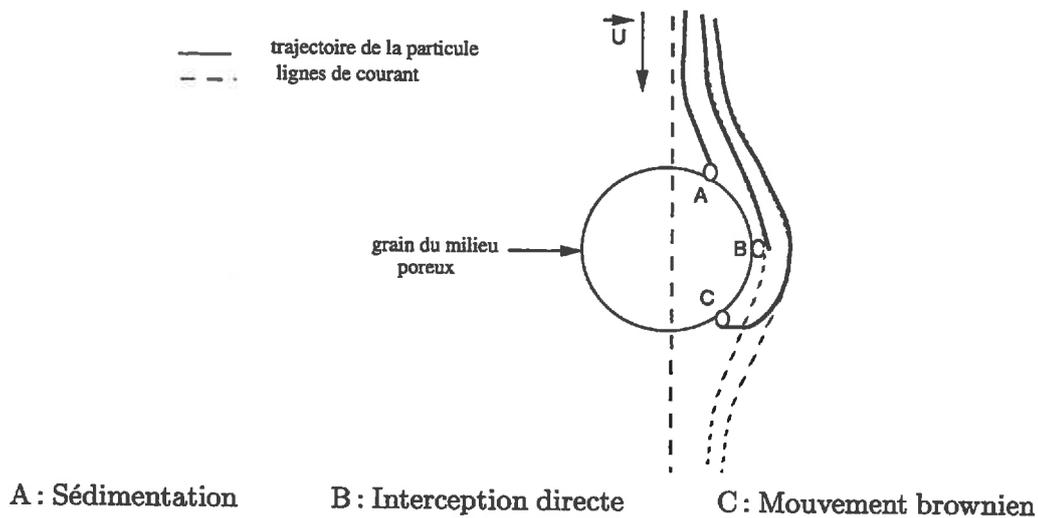


FIG. 1.6 - Mécanismes de capture des particules colloïdales en suspension (Mc. Dowell-Boyer [72])

### 1.4.5 Déposition due aux forces électrostatiques

Le filtre et les particules sont souvent porteurs de charges électriques qui influencent la rétention des particules. Ainsi, il existe des filtres dans lesquels la capture des particules est augmentée par application des forces électriques extérieures [50].

### 1.4.6 Constriction

Ce mode de capture dépend essentiellement de la géométrie du filtre et de la distribution en tailles des particules. Il concerne les particules de taille inférieure à la taille des pores.

Pour chaque type de capture, il existe un site de rétention associé à son mécanisme (fig. 1.7) : les sites de surface, les sites de crevasse (la particule est retenue entre deux surfaces convexes des deux grains), les sites de caverne (la particule est coincée dans une poche formée de plusieurs grains).

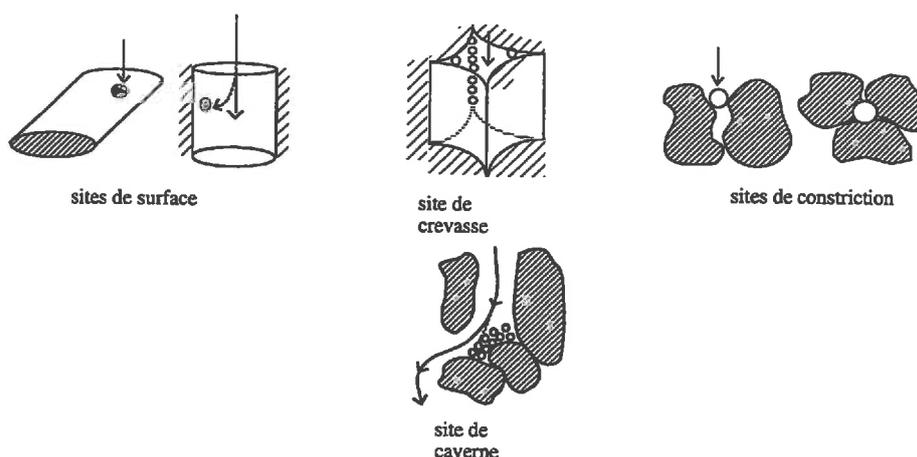


FIG. 1.7 - *Différents sites de rétention*

## 1.5 Expériences sur la filtration en profondeur

L'évolution du processus de filtration résulte des modifications de l'écoulement au niveau microscopique où les mécanismes d'agrégation, au niveau des pores, donnent naissance aux dépôts.

La compréhension de ces mécanismes de dépôt passe à la fois par des modélisations expérimentales et numériques. Nous allons résumer dans ce qui suit quelques expériences sur le colmatage des milieux poreux modèles.

La filtration en masse est un processus non permanent [17], car les pores du milieu subissent en continu des modifications dues aux mouvements et aux dépôts de particules. Ceux-ci induisent à des variations continues des paramètres d'écoulement.

Dans la majorité des études expérimentales [104, 107], le suivi de l'évolution du processus de filtration est effectué à partir de mesures de chutes de pression ou de perméabilité entre l'entrée et la sortie du filtre. Il peut également être caractérisé par la mesure de l'efficacité du filtre (le rapport de la concentration en particules à la sortie du filtre sur la concentration initiale) au cours du processus. On distingue aussi les expériences basées sur la visualisation qui donnent essentiellement des informations quantitatives sur la forme des dépôts dans les filtres [44, 45, 86]. Ces travaux seront abordés au chapitre 5 relatif aux morphologies des dépôts dans les milieux poreux.

Les difficultés rencontrées dans l'ensemble de ces recherches sont liées aussi bien au choix des particules qu'à la représentation simplifiée d'un milieu poreux réel. Concernant le milieu poreux, bien qu'il existe de nombreuses représentations, le problème réside dans l'obtention de dimensions de grains et de pores cohérents avec la réalité.

On peut, en fonction de la taille caractéristique des particules à filtrer, diviser la filtration en profondeur en deux parties: la filtration mécanique et la filtration physico-chimique.

### 1.5.1 Filtration mécanique

Les grosses particules ( $\geq 10 \mu\text{m}$ ) suivent les lignes de courant et peuvent être arrêtées dans des passages étroits du milieu poreux [26, 98]. Il résulte de ces dépôts la formation de structures appelées cavernes (voir paragraphe 1.4) qui tendent à boucher le passage et à rompre l'écoulement. Le paramètre géométrique pertinent à prendre en compte d'après Maroudas et al. [71] ainsi que Ghidaglia [40], est le rapport  $\frac{d}{d_g}$  (diamètre des particules sur diamètre des grains), ou inversement  $\frac{d_g}{d}$  pour Sakthivadivel [98] et Herzig et al. [52].

Si  $d$  est le rayon de la plus grosse particule capable de s'insérer dans l'interstice formé par les trois billes (fig. 1.8), on peut écrire que :

$$\frac{d}{d_g} = \frac{2}{\sqrt{3}} - 1 = 0,155$$

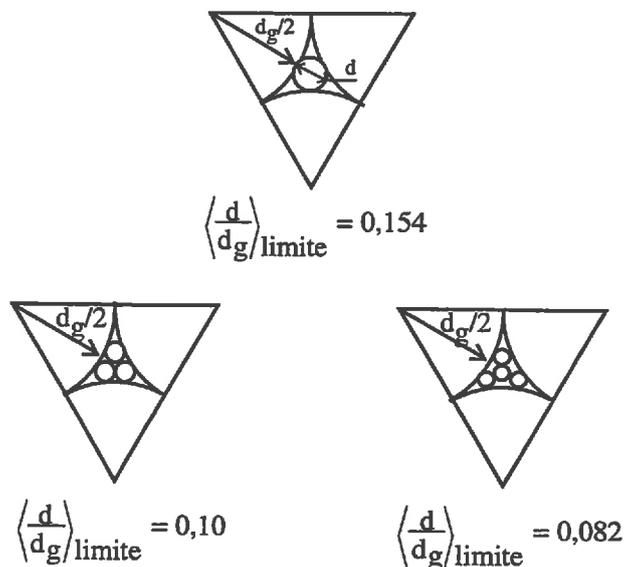


FIG. 1.8 - Blocage dans des constrictions triangulaires [52]

si :

$\frac{d}{d_g} > 0,15$ , le filtre se bloque et un gâteau de filtration se forme ;

$\frac{d}{d_g} < 0,065$ , la rétention est faible, les particules traversent le milieu.

Pour une valeur intermédiaire un colmatage partiel se produit : cela dépend de la forme des particules et de la porosité du milieu.

Ainsi, Sakthivadivel [98] trouve une perméabilité réduite d'un facteur 7 à 15 dans le cas  $0,05 < \frac{d}{d_g} < 0,1$  et un taux d'occupation de particules supérieur à 30 % du volume des pores. Ce dépôt est probablement plus important en surface, mais ce résultat est moyenné sur les 45 cm de profondeur de l'échantillon testé. Pour les particules relativement plus petites  $\frac{d}{d_g} < 0,05$ , seulement 2 à 5 % de volume de porosité est occupé tandis que la réduction de la perméabilité est de 10 à 50 % plus faible que la valeur initiale.

Herzig et al. [52] considèrent que les phénomènes de capture sont purement géométriques. Leurs analyses prévoient que 0,53 % de volume du filtre est occupé par les particules dans le cas d'un  $\frac{d}{d_g} = 0,05$  et seulement 0,053 % quand  $\frac{d}{d_g} = 0,02$ .

Par ailleurs, des expériences de filtration en masse de particules de rislan de taille comprise entre 8 et 50  $\mu\text{m}$  dans un milieu modèle transparent en résine à canaux rectangulaires de largeur comprise entre 150 à 600  $\mu\text{m}$ , conduites par Gohr et al. [43], montrent d'une part, que lorsque la perméabilité du milieu décroît, la surface du dépôt croît (fig. 1.9) et que d'autre part, la quantité de matière déposée diminue avec l'augmentation de la pression appliquée. Néanmoins, la distribution spatiale des dépôts est la même quelle que soit la pression. Ainsi, la localisation des dépôts ne dépend que de la structure et de la géométrie initiale du milieu poreux, tandis que la quantité de matière déposée est contrôlée par les conditions d'écoulement.

### 1.5.2 Filtration physico-chimique

La clarification des suspensions de particules fines joue un rôle important dans des domaines très variés de l'industrie et de la technologie des processus de séparation de phases. On trouve ces applications dans les domaines de la céramique, de la fabrication du papier, du textile et des semi-conducteurs. La migration des particules en suspension à travers un milieu poreux est un phénomène fréquent dans les problèmes d'environnement et de génie civil. Elle détermine le comportement des agents polluants (chimiques, bactériologiques et radioactifs) qui ont tendance à se fixer sur ces particules et qui peuvent parcourir des distances considérables [39, 72].

Le rapport  $\frac{d}{d_g}$  peut être inférieur à  $10^{-3}$  dans le cas d'un filtre composé de sable ou de gravier. La rétention dans ce cas est dominée par des forces physico-chimiques d'attraction entre les particules et les grains du milieu poreux.

Dans le cas des particules colloïdales seules les force de surfaces sont considé-

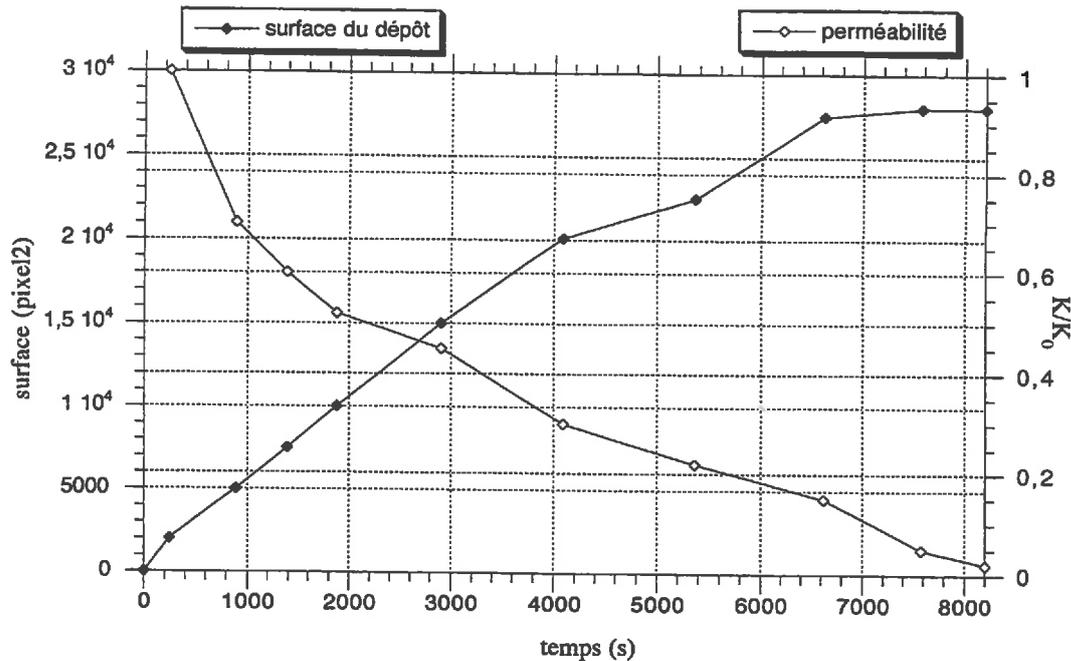


FIG. 1.9 - Evolution de la perméabilité et la surface des dépôts pour un  $\Delta p = 411,6 \text{ Pa}$  (Gohr et al. [43])

rées. Heertjes et Lerk [49] prennent en compte les forces de Van der Waals mais négligent les forces électrostatiques. En revanche, Jordan [59], dans des conditions différentes, considère le cas contraire. Pour Ives [55, 57], Edwards et Monke [31], les forces de Van der Waals et les forces électrostatiques interviennent simultanément.

En réalité, les forces électrostatiques existent à la fois entre les particules elles mêmes et entre les particules et les grains du milieu filtrant. L'introduction d'un coagulant influence simultanément l'interaction particule-particule et particule-grains. Smith [102, 103] trouve que seule l'interaction particule-grains est importante dans le cas d'une filtration sans coagulant. Inversement, la présence du flocculant (coagulant) grossit le diamètre des particules et annule l'interaction avec le filtre. Par ailleurs, l'introduction de certains électrolytes [4, 23, 41, 42], provoque la floculation (réduction du potentiel zéta qui provoque une réduction des forces répulsives entre les particules) et la formation de grosses particules sujettes aux phénomènes de sédimentation et de rétention entre les grains.

Khilar et al.[61] ont mis en évidence l'influence des variations des taux de salinité de l'eau sur la perméabilité des roches poreuses (pierres formées de sable consolidé) dans des expériences de filtration de suspension d'argile. La chute rapide de la salinité provoque une libération brusque de particules et l'engorgement rapide des pores, alors qu'une diminution lente du taux de salinité libère progressivement les particules et donc peu de particules se bloquent.

## 1.6 Effets des colloïdes argileux sur la perméabilité

Dans le cas particulier des particules d'argiles, deux types de travaux expérimentaux ont retenu notre attention :

### 1.6.1 Percolation de suspensions argileuses

Parmi ces expériences, on trouve les travaux de percolation de suspensions d'argile menés par de Cayeux [24] et Goldenberg et al. [45].

Dans son travail de thèse, de Cayeux a étudié les phénomènes de rétention dans un milieu modèle de billes de verre de diamètre de 160 à 200  $\mu\text{m}$ , engendrés par l'écoulement d'une suspension de bentonite calcique à 40 g/l. Le marquage radioactif de l'argile a permis d'une part de mesurer l'efficacité du filtre et d'autre part de tracer les profils de concentration en argile en fonction de la profondeur de l'échantillon, ainsi que la concentration en particules (particules libres + particules fixées) en fonction du volume écoulé pour une hauteur choisie. Malgré un grand volume de suspension injecté (60 fois le volume des pores), la quantité d'argile retenue est faible (de l'ordre de 0,43 g/l). De plus, on n'observe pas de phénomène de saturation du filtre en dépit d'une rétention légèrement favorisée en tête du milieu poreux. Ainsi, la perméabilité de l'empilement n'est pratiquement pas affectée par ces phénomènes d'adsorption et de rétention tant que l'échantillon n'est pas séché.

Par ailleurs, la perméabilité d'un milieu modèle en réseau de plaques de verre gravées de sorte à former des canaux orthogonaux interconnectés de diamètre de 0,2 mm, est réduite de façon importante suite à la filtration de suspensions de particules d'argiles (kaolinite et smectite préalablement saturées en ions  $\text{Na}^+$  dans des suspensions diluées de NaCl 0,05 M) faiblement concentrées (0,5 g/l) [45]. La suspension de kaolin crée une accumulation des dépôts tout d'abord sur les cotés du réseau parallèles à l'écoulement, puis sur les autres cotés (fig. 1.10, a). Ceci entraîne une réduction de perméabilité de 50 % environ. Les particules de smectite faiblement floculées perturbent l'écoulement en occupant parfois entièrement des canaux. Par conséquent on voit apparaître des chemins d'écoulement préférentiels (fig. 1.10, b)

### 1.6.2 Influence des cycles de séchage

Les effets des cycles d'imbibition-séchage sur la perméabilité des milieux poreux contenant des particules argileuses au sein même de l'empilement [44, 46] ou en suspension ont été abordés dans les travaux de Goldenberg et al. [44].

Ils ont étudié la variation des paramètres hydrauliques aussi bien d'un milieu modèle tel qu'il est présenté dans le paragraphe précédent (diamètre des

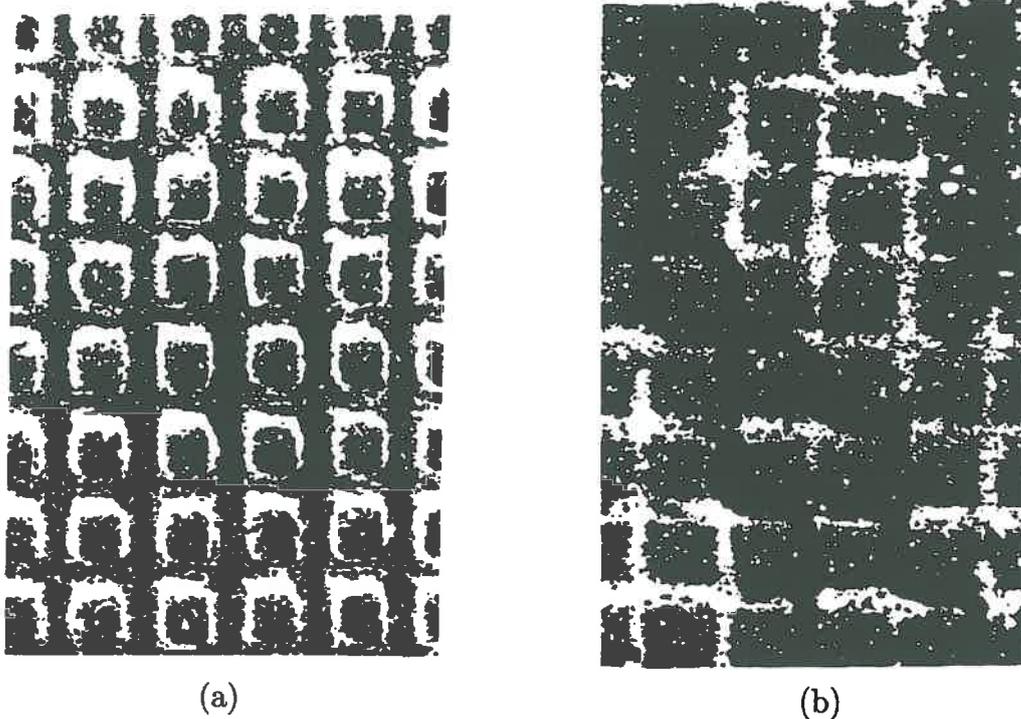


FIG. 1.10 - (a) Accumulation de la kaolinite dans le milieu modèle (b) partie obturée avec un chemin libre dans le réseau (Goldenberg [45])

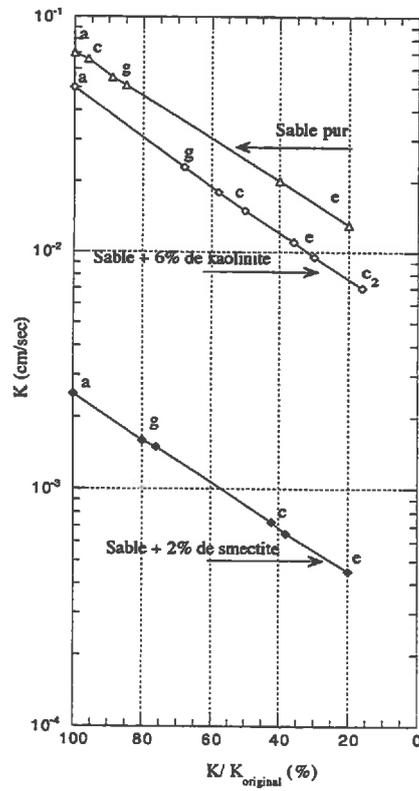
canaux 0,1 mm) [44] que des empilements de mélanges de sable et d'argiles (3% de smectite, et 6 % de kaolin). Ils effectuent des écoulements de suspension saline de NaCl (0,1 molaire), puis l'échantillon subit les différents cycles de séchage à 22 °C et de réimbibition tels qu'ils sont présentés figure 1.11.

La figure 1.11 illustre la variation de la perméabilité aux différentes étapes du traitement (a, c, e, g). L'échantillon mélangé avec la smectite subit la plus importante réduction de perméabilité. Elle atteint 85 % de la perméabilité initiale à l'étape (e), tandis que la chute de la perméabilité du mélange sable-kaolinite est de l'ordre de 80 % plus faible à l'étape (c).

Les auteurs expliquent que ces variations importantes de la conductivité hydraulique sont dues aux réarrangements et à l'accumulation des particules argileuses aux interfaces liquide-gaz durant les phases d'évaporation. Ceux-ci forment après séchage des bordures sur les grains et des pontages reliant ces derniers.

Etape	Position initiale du tube	Etat de l'écoulement	Position finale du tube	Paramètre établi
a		Écoulement		$K_{original}$
b		Évaporation		
c		Écoulement		
d		Évaporation		
e		1- Apport en suspension par la partie supérieure du tube 2- Écoulement		
f		Évaporation		
g		Écoulement		$K_{final}$

(a)



(b)

FIG. 1.11 - (a) Différents traitements d'imbibition séchage, (b) Réduction de la perméabilité aux différentes étapes de traitement (Godenberg [44])

## 1.7 Processus de décolmatage

La maîtrise du décolmatage passe par une meilleure connaissance des phénomènes de colmatage des milieux filtrants. Différents travaux ont montré des différences de rétention entre les fines et les grosses particules : ces dernières sont plus fortement fixées aux grains du filtre que les particules fines. Il en résulte que le colmatage du filtre par des particules de diamètre  $\geq 30 \mu\text{m}$  est un phénomène irréversible, tandis que les particules de diamètre  $< 30 \mu\text{m}$  semblent être fixées de manière provisoire sur le filtre.

L'article de Herzig et al. [49] précise qu'il est nécessaire de distinguer deux types de décolmatage possible. La différence entre les deux types de processus se situe dans le fait que le premier (décolmatage spontané) agit localement au niveau du pore, alors que le second (décolmatage par l'application de forces) se produit partout dans le milieu poreux.

### 1.7.1 Décolmatage spontané

Le décolmatage spontané est dû à un écoulement normal de la suspension. Ce dernier se produit localement à cause d'une variation de pression au niveau d'une zone de rétention ou à cause de la collision d'une particule en mouvement avec une particule déjà retenue.

Le décolmatage spontané des particules de diamètre  $d \geq 30 \mu\text{m}$  est improbable [70, 97]. Pour les particules de diamètre  $d < 30 \mu\text{m}$ , les expériences semblent contradictoires : alors que certains montrent que c'est possible, d'autres démontrent le contraire. Une expérience de filtration à débit constant de  $0,23 \text{ cm/s}$ , dans un sable de diamètre de grains de  $1500 \mu\text{m}$  [75, 76], montre qu'il existe une libération de flocons fins de colloïdes argileux ou humiques. Après 2 heures, l'écoulement s'estompe et la charge hydraulique devient environ 25 fois plus forte que la charge initiale. Mintz [75, 76], montre aussi que l'augmentation graduelle du débit provoque un décolmatage à chaque stade du processus. Ainsi, Mintz pense que le colmatage et le décolmatage sont deux phénomènes qui se produisent simultanément. Par ailleurs, Stein [105] observe un décolmatage avec l'augmentation de la vitesse interstitielle du milieu filtrant. En revanche, Ives [56], Heertjes et Lerk [49] ne mentionnent aucun décolmatage possible dans leurs expériences.

Les autres auteurs tel que Herzig [51] ont étudié le comportement de grosses et de fines particules retenues dans le milieu poreux après passage d'un liquide clarifié aux mêmes débits que la suspension. Ces auteurs ont noté qu'aucun décolmatage n'est possible, sauf dans le cas d'impulsions où une grande quantité de particules s'est libérée. Par contre, les essais de filtration de suspension de bentonite colloïdale de Cayeux [24] ont mis en évidence un phénomène d'échange entre les particules en suspension et les particules fixées, ainsi qu'un phénomène de relargage des particules fixées lors d'un écoulement à débit constant d'eau dans le milieu poreux (fig.1.12,  $\sigma$  étant la rétention et  $V_p$  le volume des pores).

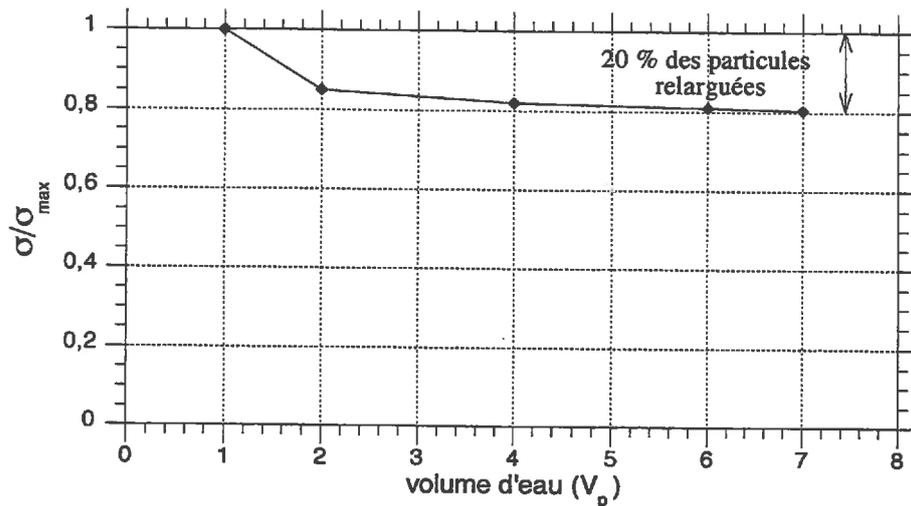


FIG. 1.12 - *Relargage de particules argileuses après passage de l'eau (de Cayeux [24])*

En général, il apparaît improbable que le décolmatage spontané se produise au début de la filtration. Mais en s'approchant de la saturation du milieu filtrant, la vitesse interstitielle du milieu augmente considérablement et le décolmatage peut alors se produire.

### 1.7.2 Décolmatage par application de forces extérieures

Le décolmatage peut être provoqué par des changements dans les conditions d'écoulement tels que le débit ou la pression. Dans le cas des grosses particules, la méthode de décolmatage la plus efficace est l'inversion du sens de l'écoulement, en particulier quand celui-ci se fait dans le même sens que la gravité [40]. Dans le cas d'application d'impulsions [40], 15 à 20 % de particules capturées peuvent être libérées puis recapturées plus loin. L'accroissement du débit d'un facteur trois ou quatre peut provoquer un léger décolmatage mais parfois on ne note aucun effet [40, 51, 97].

## 1.8 Conclusions

De par leur nature poreuse et leurs fonctions, les filtres sont sujets aux phénomènes de colmatage. Ceux-ci peuvent se produire de façon plus ou moins rapide suivant le type de filtration, ainsi que la nature et la taille des particules à filtrer.

La porosité connexe des chaussées drainantes (supérieure à 20 %) leur permet d'évacuer les eaux pluviales. Elles assurent ainsi une fonction de filtre pour ces eaux. Bien que quelques particules d'origines diverses (de tailles supérieures ou égale aux diamètres des pores) traversent le corps filtrant, la majorité d'entre

elles sont retenues sur les deux premiers centimètres de la chaussée. On appelle ce dépôt "colmatant primaire". Il réduit de façon considérable la perméabilité de celle-ci (annexe A). On considère que cette étape (premier niveau de colmatage) est tout à fait comparable au cas d'un colmatage par formation de "gâteau" (cf 1. 2. 3 ) à la différence près que la formation du dépôt à l'extérieur de la chaussée (fig.1.3) est impossible du fait de la circulation des voitures.

Parmi les procédés de filtrations, on distingue les expériences de filtration de particules colloïdales et argileuses. Dans la majorité des cas, les procédés d'écoulements génèrent dans les filtres (empilements de sable, de gravier, milieux modèles de billes de verre ou réseau en résine ...etc) des phénomènes de rétention provoquant l'accumulation de particules dans les pores. Ces dépôts occupent la porosité des filtres et peuvent rompre l'écoulement [45, 46]. Néanmoins, de Cayeux [24] a montré que la perméabilité d'un empilement de billes de verre n'est pas affectée par l'écoulement d'une suspension de bentonite à 40 g/l, tant que l'échantillon n'est pas séché.

Les travaux de Goldenberg et al. ont mis en évidence des variations importantes de la conductivité hydraulique des empilements de sable après avoir subi des cycles d'humidification et de séchage. Les cycles imbibition-séchage, à notre avis, illustrent bien les effets climatiques que subit la chaussée à partir du moment où elle est mise en service. En effet, après humidification par les eaux pluviales, la chaussée est soumise ensuite à des phénomènes d'évaporation intense par temps sec.

Par ailleurs, ces eaux pluviales peuvent transporter des particules ultrafines (argiles ou matières organiques qui sont respectivement des produits de l'altération des roches ou du bitume) qui vont être filtrées par la chaussée et donc par le colmatant primaire.

En prenant en compte ces quelques considérations, nous avons établi un protocole expérimental basé sur les hypothèses suivantes :

On suppose, pour le milieu granulaire, que :

- le premier niveau de colmatage (colmatage par formation de gâteau) est terminé ;
- ce colmatant est appelé colmatant primaire, il ne possède pas de cohésion initiale ;
- on modélise le colmatant primaire par un milieu granulaire pulvérulent (bille de verre pour remplacer le sable).

Pour étudier les mécanismes responsables de la cohésion, on considère que :

- la pluie, avant de s'évacuer par la chaussée, transporte des particules ultrafines (par exemple les particules accrochées aux véhicules). C'est donc un facteur d'apport en suspension colloïdale ;

- les colloïdes sont de deux sortes, les colloïdes argileux et les colloïdes organiques ;
- les cycles imbibition-séchage illustrent les effets climatiques.

## Chapitre 2

# Protocole expérimental

### 2.1 Introduction

L'amélioration du procédé de décolmatage des chaussées poreuses est un enjeu décisif pour l'essor des enrobés drainants. En effet, une meilleure connaissance des mécanismes de colmatage permettra une meilleure application des outils de décolmatage pour ce type de chaussées. Ceci assurera d'une part une constance des qualités hydrauliques et acoustiques pour les quelques 30,5 millions de mètres carrés de chaussées poreuses appliquées jusqu'en 1995, et d'autre part une expansion plus grande de cette technique dans le réseau routier français.

Il semble selon Pichon [89] que, dans un premier temps, les sédiments colmatants envahissent aisément toute la porosité de la chaussée : les pores ouverts en surface et les pores immédiatement sous-jacents. L'effet du temps se fera sentir par accumulation et densification des dépôts dans ces zones. Par ailleurs, durant son exploitation, la chaussée poreuse est soumise de façon permanente aux effets climatiques. En effet, par temps de pluie, l'eau pluviale s'infiltré à travers le corps de la chaussée pour s'évacuer dans le sol ou par un réseau de récupération des eaux pluviales. Par temps chaud ou sec, la chaussée subit un réchauffement par sa surface, et des effets d'évaporation intenses se produisent au sein de sa structure poreuse. Le colmatant accumulé dans les pores subira, au même titre que la chaussée, les effets des cycles d'imbibition-séchage dus à ces changements climatiques.

Les colmatants analysés lors des études précédentes sont récupérés soit par une méthode manuelle (grattage des dépôts au sein des pores de surfaces de la chaussée [89]), soit par une méthode mécanique (balayeuse-aspiratrice avec ou sans système de recyclage des eaux [12, 18]). Lors de l'opération de grattage manuel, la fraction fine du sédiment colmatant est susceptible de s'échapper à cause de la très petite taille de ces particules, et de s'accrocher, grâce à leurs grandes surfaces spécifiques, au bitume qui recouvre les granulats de la chaussée. En ce qui concerne la seconde méthode, les matériels de décolmatage (en particulier les

modèles dotés de système de recyclage des eaux) passent les boues de décolmatage à travers des filtres de  $50 \mu\text{m}$  de diamètre. On constate ainsi que la fraction fine (argile), déjà peu prédominante dans les produits de colmatage, se perd encore un peu plus au cours de ces opérations de nettoyage de chaussées. Par ailleurs, les méthodes d'analyses utilisées jusqu'ici (granulométrie et diffraction aux rayons x) ne sont pas particulièrement adaptées pour doser les fractions fines alors qu'il serait intéressant d'étudier dans quelle mesure elles sont responsables de la cohésion du colmatant. Aussi, par mesure de simplification du problème posé, nous allons étudier au laboratoire à travers un modèle physique du colmatant les mécanismes responsables de la cohésion de ce dernier.

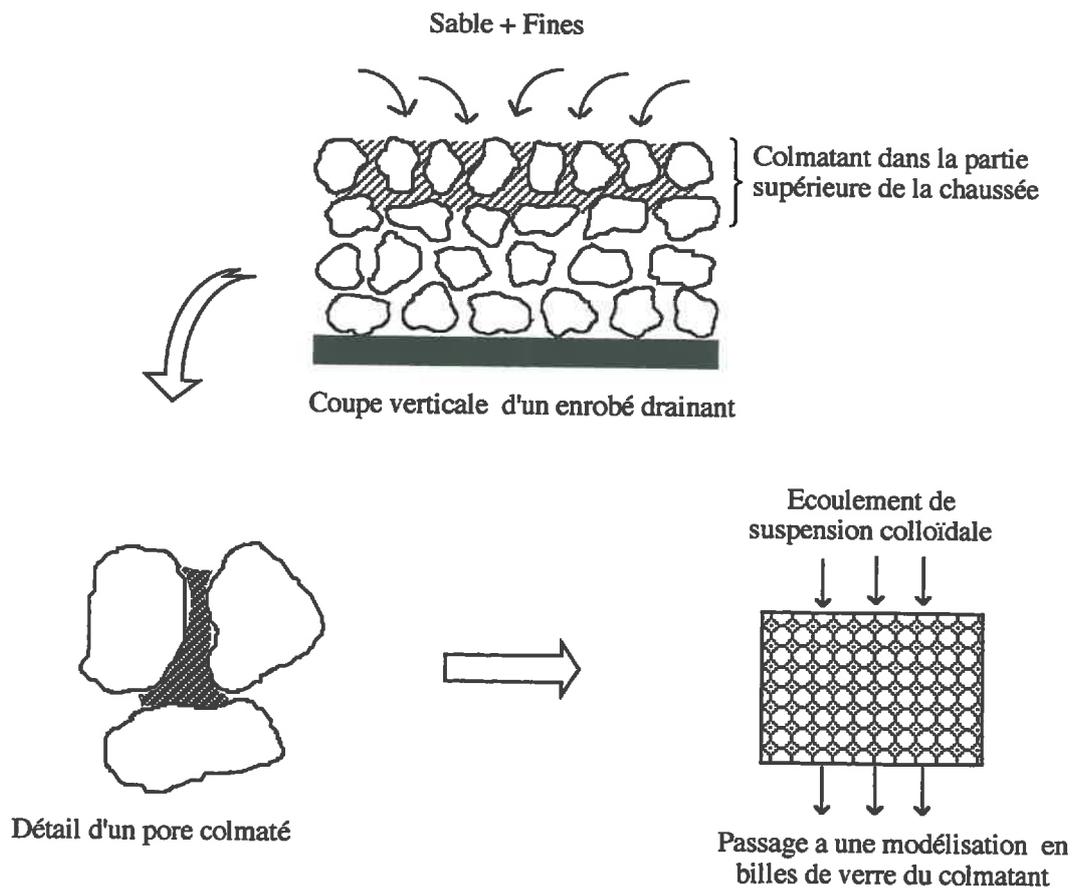


FIG. 2.1 - Modélisation du colmatant primaire par un milieu modèle en billes de verre

Il semble évident qu'une fois que le colmatant primaire (le sable fin) est mis en place dans les pores de la chaussée, la perméabilité globale de la structure dépendra uniquement de la perméabilité de ce nouveau dépôt. A ce stade, toute variation possible de la perméabilité globale ne peut être que le résultat de variations au niveau de ce colmatant. Ceci nous permet donc de nous affranchir d'une modélisation physique qui pourrait contenir l'ensemble de la chaussée (fig. 2.1) :

on isole un pore représentatif et on modélise ce dépôt par un empilement de grains sans cohésion initiale. Les dimensions de l'échantillon sont telles que l'on peut effectuer aisément des manipulations expérimentales.

On cherchera par la suite "le colmatant secondaire" qui sera responsable de la cohésion du colmatant primaire. Pour ce faire, on fera subir aux empilements poreux des cycles d'imbibition-séchage par des suspensions colloïdales à faible concentration pour illustrer l'effet des variations climatiques combiné à des apports de particules fines. En outre, les suspensions colloïdales seront de deux types : une suspension de bentonite sodique brute à 1 g/l pour étudier l'effet des colloïdes minéraux dans le milieu poreux modèle (en plus du caractère stable de la suspension de bentonite, l'analyse aux rayons x révèle la présence de montmorillonite sous forme de traces dans les sédiments colmatants), et une suspension de particules de bentonite sodique enrobées de bitume pour prendre en compte l'effet de la présence de celui-ci dans les produits de décolmatage.

Dans ce chapitre sont présentées les caractéristiques du milieu modèle et des particules de bentonite utilisés. Le montage expérimental ainsi que la méthode de préparation de l'échantillons sont décrits.

## 2.2 Milieu modèle

Le passage par un milieu modèle, préparé selon un mode opératoire bien précis, nous permet d'avoir des échantillons homogènes et reproductible.

La distribution de tailles du milieu modèle représentant le colmatant primaire (milieu sableux sans cohésion initiale) est choisie de sorte à satisfaire à la fois aux conditions d'écoulement en évitant la formation du gâteau au cours des cycles d'imbibition (pour se situer dans le domaine de la filtration physico-chimique), et aux conditions granulométriques en se rapprochant le plus possible de la distribution de taille des colmatants réels (sable fin).

### 2.2.1 Choix du milieu poreux

Le choix du milieu modèle est guidé par la réalisation de deux types d'essais :

- des essais de filtration de la suspension colloïdale à travers des empilements poreux de billes de verre sodique de différentes distributions granulométriques (6-50  $\mu\text{m}$ , 28-50  $\mu\text{m}$ , 37-50  $\mu\text{m}$ , 32-64  $\mu\text{m}$  et 45-90  $\mu\text{m}$ ). Les fractions granulométriques pour lesquelles nous n'avons pas observé de problème de formation de gâteau en surface d'écoulement sont : 32-64  $\mu\text{m}$  et 45-90  $\mu\text{m}$ .
- des essais de désorption par application de pressions d'air variables sur des empilements granulaires initialement saturés en eau. Le but est de comparer les courbes de succion des matériaux modèles avec la courbe de succion d'un colmatant réel. Le dispositif expérimental est une presse à membrane [3]

constituée d'une colonne de plexiglas d'une section de  $15,2 \text{ cm}^2$ . L'empilement (d'une hauteur de 2,5 cm) est disposé sur une "tête de colonne" équipée d'une membrane de diamètre de pore de  $0,2 \mu\text{m}$  (voir détail "tête de colonne" figure 2.10).

**Remarques :**

1 - Le colmatant utilisé provient d'une opération de décolmatage menée par le centre de Nantes du Laboratoire Central des Ponts et Chaussées sur le site expérimental de Rezé (chaussée urbaine de la rue de la Classerie). Le matériel de décolmatage, appliquant une pression de 400 bars, est doté d'un système de recyclage des eaux.

L'analyse de ce sédiment sera présentée ultérieurement : la granulométrie, la diffraction aux rayons x et la valeur au bleu.

2 - L'utilisation du colmatant brut ne nous a pas permis de tracer la courbe de succion. En effet, ce dernier contient non seulement des gros granulats provenant de l'arrachement dû à la forte pression d'aspiration, mais aussi des matériaux divers tels que des débris de verre, du papier, de l'aluminium,...etc. Le fractionnement du matériau permet d'éliminer le maximum d'impuretés tout en gardant la partie la plus fine, qui en fait présente une plus grande surface spécifique que celle des gros grains, donc une adsorption maximale de particules ultra-fines.

### 2.2.2 Comparaison des courbes de succion

Tandis que la courbe granulométrique donne la distribution des tailles des particules, la courbe de succion nous informe sur la distribution de la taille des pores formés par l'empilement du milieu granulaire.

Dans les zones de capillarité localisée, la pression moyenne de l'eau dépend de la taille des pores entre lesquels se forment des ménisques, donc du rayon de courbure de ces derniers. Celui-ci est donné par la loi de Jurin dans le cas d'un capillaire :

$$h_c = \frac{2\sigma \cos \alpha}{\rho_w g r} = \frac{p_c}{\rho_w g}$$

$h_c$  : hauteur capillaire ;

$\sigma$  : tension superficielle de l'eau ;

$r$  : rayon du capillaire ;

$\rho_w$  : masse volumique de l'eau ;

$g$  : accélération de la pesanteur ;

$\alpha$  : angle de mouillage ( $\approx 0$  pour l'eau) ;

$p_c$  : pression capillaire.

La pression capillaire  $p_c$  représente la différence entre la pression de l'air  $p_a$  et la pression de l'eau  $p_w$  :

$$p_c = p_a - p_w$$

En général, la courbe de succion (fig. 2.2, a) n'est pas univoque, mais dépend de la variation de la teneur en humidité, soit en humidification (adsorption), soit en drainage (désorption), d'où le phénomène d'hystérésis [29, 77]. Les forces de capillarité dépendent de l'organisation de l'espace poral et de la surface spécifique des particules constitutives de l'empilement granulaire; la forme et la relation entre la pression et la teneur en eau constituent une caractéristique spécifique à un milieu donné. L'analyse de la courbe de succion s'avère délicate, car elle révèle des phénomènes mal connus et peu accessibles. Néanmoins, les quelques considérations suivantes, issues des observations, permettent de déduire que dans la gamme des succions matricielles élevées, la teneur en eau reste plus importante dans un empilement à texture fine, telle qu'une argile, que dans un milieu sableux. Par contre, dans la gamme des succions faibles, la teneur en eau d'un sol compact diminue moins rapidement que celle d'un milieu comportant des pores de gros diamètre (fig. 2.2, b). En effet, le compactage réduit la porosité du milieu par l'élimination essentiellement des gros pores. Les courbes obtenues se composent, en général, de plusieurs branches, chacune correspondant à un ensemble de forces prépondérantes à partir d'un certain seuil de teneur en eau :

La branche AB :

Cette branche correspond au drainage des gros pores puisque les forces capillaires ne sont pas suffisantes pour s'opposer au remplacement du liquide mouillant par l'air (la phase aqueuse étant toujours continue).

Le point B :

Il représente le point de rupture de la courbe, il correspond à la transition de la phase de drainage continu liquide à la phase de drainage avec apparition de la phase gazeuse dans le milieu (état pendulaire). La valeur de la dépression en ce point représente la limite en-deçà de laquelle les forces de capillarité et d'adsorption seront prépondérantes.

La branche BC :

Lorsque la teneur en eau devient inférieure à la teneur équivalente au point B, l'eau contenue dans le milieu granulaire est fortement adsorbée sur les particules. C'est pourquoi, il est très difficile d'éliminer toute l'eau même en exerçant de fortes pressions.

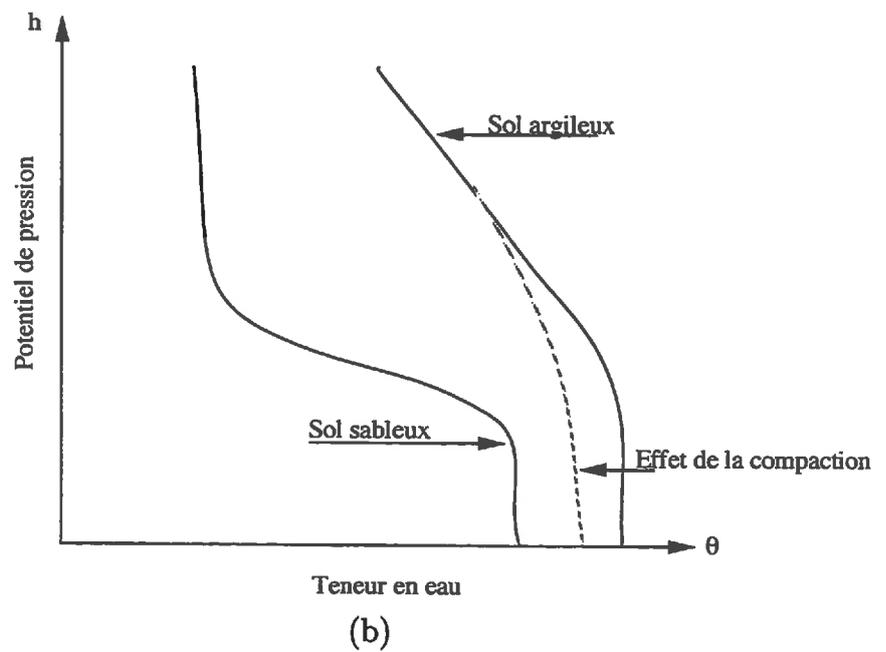
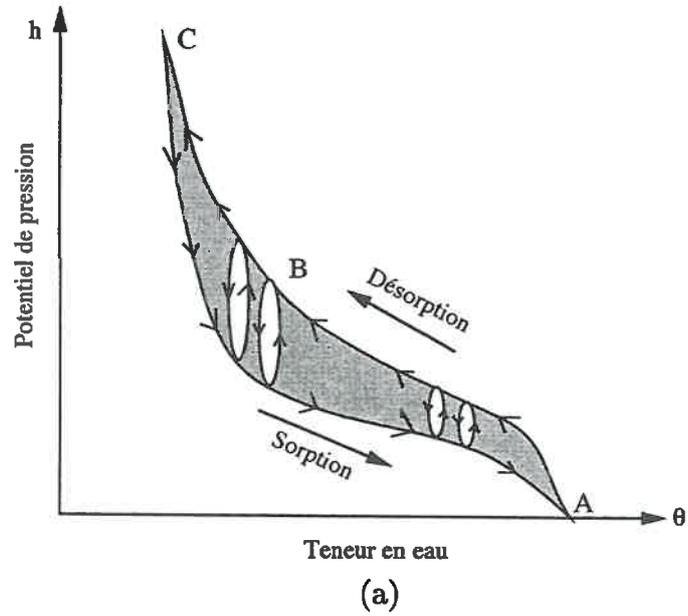


FIG. 2.2 - Exemples de courbes de succion [77]

Les courbes de succion ci-dessous (fig. 2.3) sont obtenues par application de pressions d'air variables sur des empilements initialement saturés en eau des billes de 45-90  $\mu\text{m}$  et sur la fraction inférieure à 1,25 mm d'un colmatant réel (Rezé, Nantes). Pour chaque variation de pression, on mesure par pesée le poids d'eau évacué à l'équilibre et on déduit la teneur en eau résiduelle dans l'échantillon.

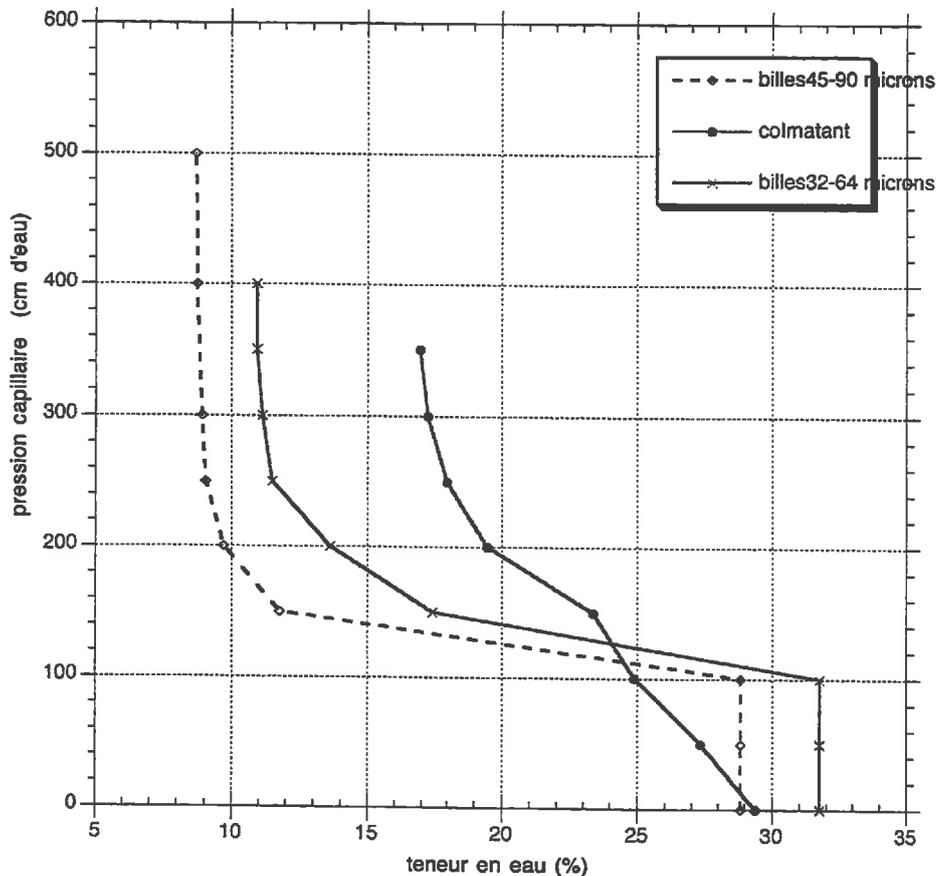


FIG. 2.3 - Comparaison des courbes de succion

La comparaison des courbes de succion (fig. 2.3) montre que, bien que les allures des courbes de succion du colmatant réel et des colmatants modèles soient différentes, la dépression se situe entre 1 et 2 m d'eau pour les deux matériaux. On distingue sur la courbe du colmatant modèle un palier entre 10 et 30 % de teneurs en humidité. Ce palier est dû à l'évacuation simultanée d'un grand nombre de pores de même taille. En effet, le milieu modèle est constitué de grains de taille relativement égale (fig. 2.5). Le colmatant réel ne présente pas ce genre de palier, car sa distribution granulométrique est plus large (fig. 2.4). De plus, le sédiment colmatant contient un pourcentage de fines plus élevé que le milieu modèle : on remarque une teneur en eau plus importante à la fin de l'essai de celui-ci.

Au vu des résultats obtenus sur les courbes de succion et sur les essais de percolations de suspensions colloïdales, les fractions de billes de 32-64  $\mu\text{m}$  et 45-

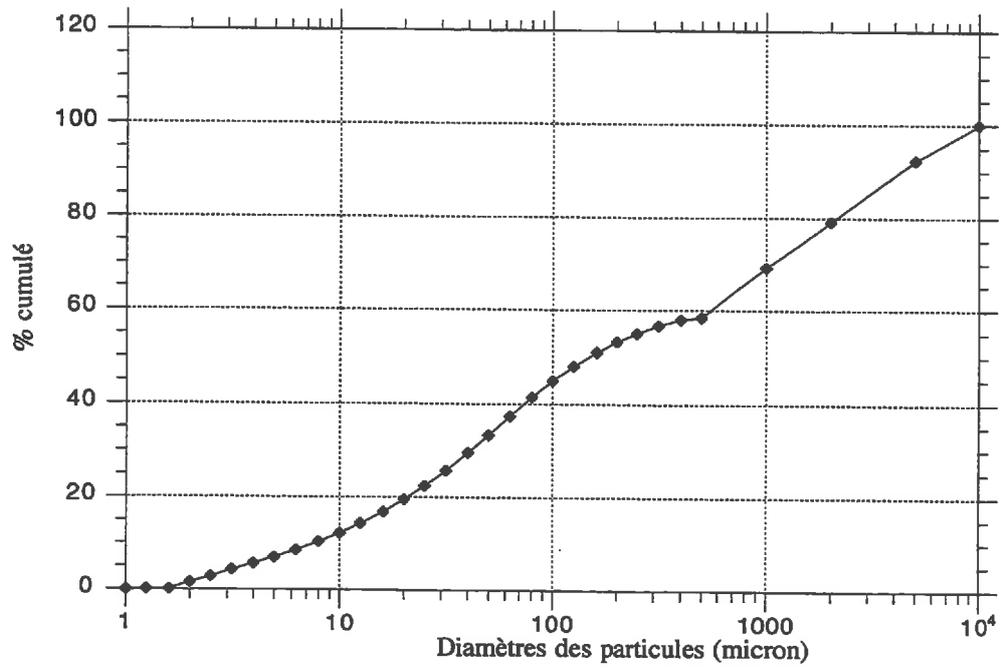


FIG. 2.4 - Courbe granulométrique (laser) d'un colmatant réel

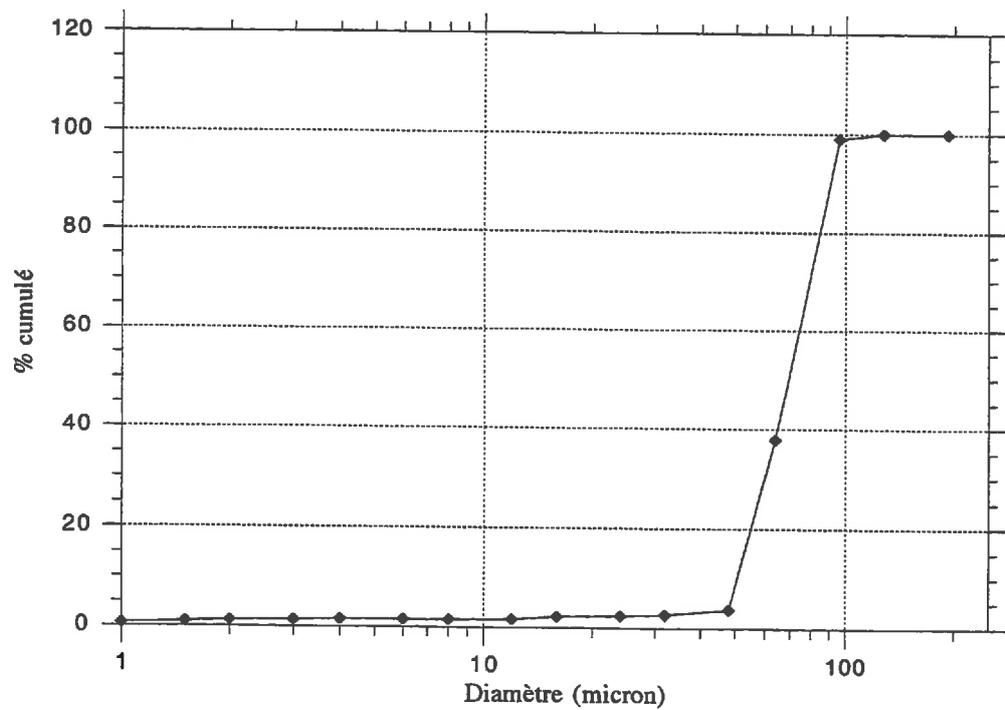


FIG. 2.5 - Granulométrie laser du milieu modèle des billes de verre

90  $\mu\text{m}$  peuvent être utilisées. Mais pour des raisons pratique de disponibilité, nous avons opté pour la fraction de billes de verre comprise entre 45 et 90  $\mu\text{m}$ . La courbe granulométrique, obtenue par granulométrie laser (du type Cilas modèle 715), donne une taille moyenne des grains de 70  $\mu\text{m}$  (fig. 2.5).

### 2.2.3 Caractérisation du milieu poreux

Le milieu modèle est constitué d'un empilement de grains de forme sphérique sans cohésion entre eux. La figure 2.6 montre l'aspect extérieur des billes de verre observées au microscope électronique à balayage (M.E.B.). Ces billes, de densité de 2,47 (mesurée par un pycnomètre à l'hélium), présentent parfois quelques défauts de fabrication : on observe par exemple des billes collées et des excroissances.

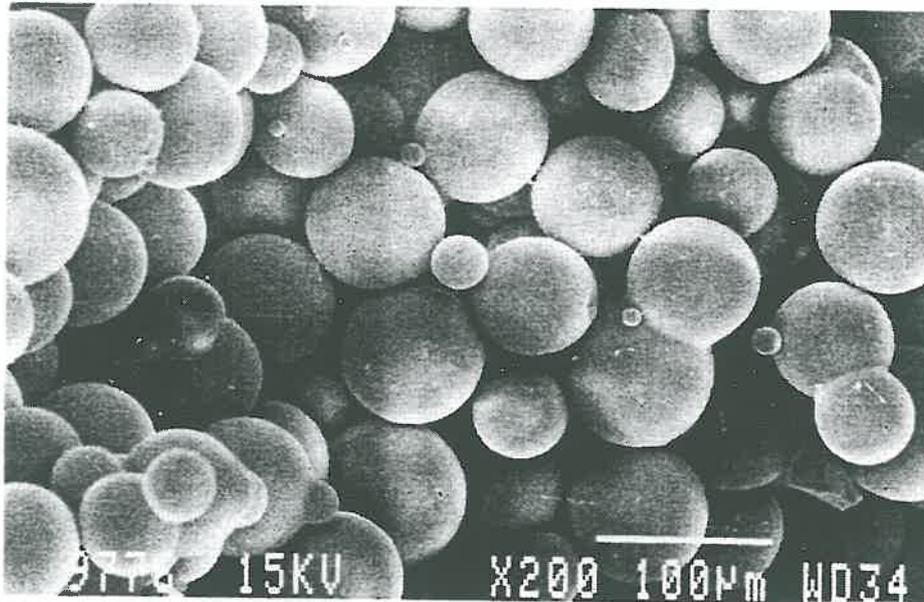


FIG. 2.6 - Aspect extérieur des billes de verre du milieu modèle observé au microscope électronique à balayage

### 2.2.4 Porosité du milieu modèle

Connaissant la masse de l'échantillon à l'état sec  $M_b$ , ainsi que le volume d'eau nécessaire pour saturer le milieu, on peut calculer la porosité de ce dernier. On trouve un taux de porosité  $n = 33 \pm 2 \%$ .

Le passage de l'échantillon au banc gamma (annexe E) donne une valeur de porosité équivalente à la valeur précédente, soit  $n = 33 \pm 1 \%$ .

### 2.2.5 Valeur au bleu des billes de verre

L'avantage de la méthode au bleu de méthylène (annexe D) est que ce procédé permet de quantifier exclusivement la fraction argileuse, sans qu'il soit nécessaire de la séparer du reste du matériau, ce qui n'est pas une opération très facile à réaliser en pratique. D'autre part, cette méthode donne de bonnes précisions même pour les faibles teneurs en argile, ce qui est notre cas.

#### Définition :

La valeur au bleu  $V_b$  est par définition la quantité de bleu de méthylène adsorbée en gramme par 100 grammes de matériau. Les caractéristiques du bleu de méthylène ainsi que la méthode sont décrites en annexe D. La valeur au bleu des billes de verre constituant l'empilement poreux est de  $3,24 \cdot 10^{-4}$ . Le verre est un matériau chimiquement inerte, il ne possède pas de charges surfaciques capables d'attirer les molécules du bleu de méthylène (cation organique) sur sa surface (fig. 2.7, tube 2). Une imprégnation du milieu granulaire par de l'argile, donne à l'empilement une valeur au bleu positive, et une coloration bleu violet aux billes de verre (fig. 2.7, tube 1). Cette valeur dépend donc du type d'argile et non du milieu poreux.

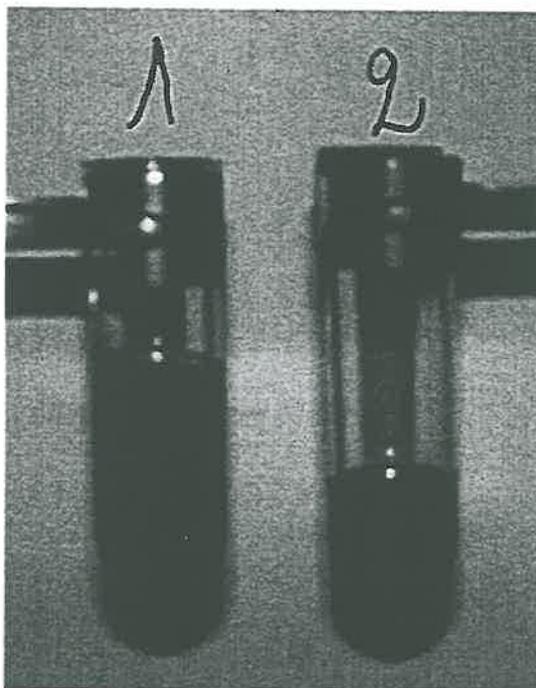


FIG. 2.7 - Coloration des billes de verre par le bleu, 1 : billes imprégnées d'argile, 2 : billes propres

## 2.3 Les colloïdes de bentonite

### 2.3.1 Introduction

Les fractions fines des matériaux sont, en général, responsables de la cohésion des grains de tailles supérieures (sable, gravier,...etc.). Parmi ces matériaux, on peut distinguer les argiles qui sont très répandues dans les sols.

Par ailleurs, l'analyse par diffraction de rayons x révèle, parmi les constituants les plus fins du colmatant, la présence de bentonite sous forme de trace dans les sédiments de décolmatage ([89], annexe B).

Ainsi, nous avons choisi une suspension de bentonite sodique pour étudier l'effet d'apports cycliques en particules fines. Pour éviter les effets de sédimentation par gravité dans le milieu poreux modèle au cours des cycles imbibition-séchage, nous n'avons considéré que la fraction colloïdale de la bentonite.

Les colloïdes sont définies granulométriquement comme étant des particules de taille inférieure à  $0,2 \mu\text{m}$ . Pour de telles dimensions, en l'absence de forces extérieures, l'influence des forces de gravitation est négligeable devant le mouvement brownien. Pour les particules colloïdales, les phénomènes de surface (double couche, adsorption, hydratation, et échange ionique) sont prépondérants. Il en est ainsi pour les particules argileuses dont le diamètre varie de  $0,2$  à  $2 \mu\text{m}$  (annexe C).

### 2.3.2 Caractérisation des particules colloïdales de la bentonite

La bentonite est une argile de la famille des smectites. Elle se distingue par sa grande affinité pour l'eau et son important pouvoir de gonflement en présence de ce liquide. La bentonite utilisée provient du dépôt du Tréport de la société Lambert-Rivière. En réalité, c'est la fraction de particules de tailles inférieures à  $0,2 \mu\text{m}$  qui nous intéresse pour obtenir des suspensions colloïdales. Ces dernières sont obtenues après dispersion de l'argile dans l'eau distillée et décantation des grosses particules. On se situe ainsi dans le domaine de la filtration physico-chimique. Les caractéristiques de cette bentonite sont présentées dans ce qui suit.

### 2.3.3 Analyse aux rayons x

La diffractométrie aux rayons x de la bentonite brute [53] donne la composition suivante : de très fortes quantités de montmorillonite, de quartz et de cristobalite. On remarque aussi une forte quantité de calcite tandis que la dolomite et la tridymite ne sont que faiblement représentées. Les micacés se présentent sous forme de trace et on note une présence incertaine des sépiolites.

### 2.3.4 Courbe granulométrique de la bentonite brute

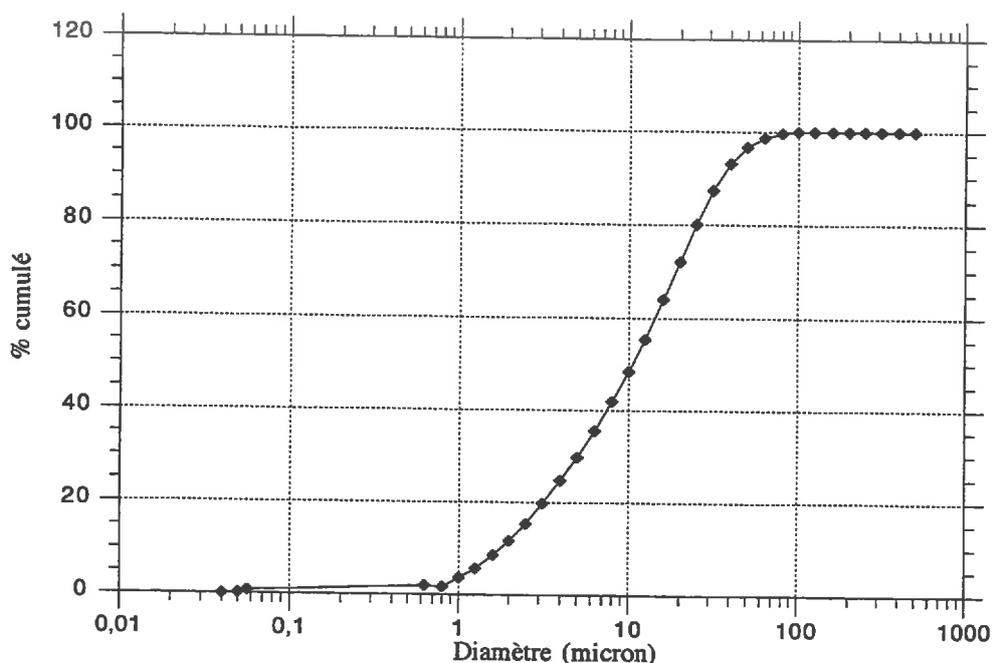


FIG. 2.8 - *Distribution granulométrique de la bentonite*

### 2.3.5 Valeur au bleu de la bentonite

La valeur au bleu de la bentonite traduit en première approximation la quantité de colorant nécessaire pour recouvrir d'une couche de ses molécules la surface totale développée par la fraction argileuse, [23, 48]. Par l'application de la méthode décrite en annexe D, on trouve une valeur au bleu de la bentonite  $V_b = 33 \pm 2\%$ .

### 2.3.6 Surface spécifique et capacité d'échange cationique (C.E.C)

La surface spécifique est définie comme la somme des surfaces que développe chaque grain d'une unité de masse d'un matériau finement divisé. Elle s'exprime en  $[m^2/g]$ .

En connaissant la valeur au bleu de l'argile et sachant qu'une molécule de bleu couvre une surface de  $130 \text{ \AA}^2$ , on peut calculer la surface totale développée par l'argile. On trouve une surface spécifique de  $691 m^2/g$  (pour un  $V_b = 33$ ).

La valeur au bleu peut être aussi reliée à la capacité d'échange cationique du minéral [48, 110]. Exprimée en milli-équivalent par 100 g de matériau, la capacité d'échange cationique représente le nombre de cations nécessaires attirés à la surface de la particule pour atteindre l'électroneutralité. Sachant que la masse molaire  $M_b$  du bleu est de 373,9 et qu'une mole de bleu représente un équivalent,

on trouve :

$$C.E.C = \frac{1000 V_b}{M_b} (meq/100g) = 88,25 meq/100g$$

### 2.3.7 Suspension colloïdale de bentonite à 1 g/l

La suspension colloïdale de bentonite à 1 g/l est obtenue par dispersion du matériau dans l'eau distillée et sédimentation pendant plusieurs jours (minimum 3 jours) dans des bocaux fermés pour éviter l'évaporation.

Une suspension stable est définie comme étant une suspension dont la dispersion des particules est homogène au sein du liquide. Cette situation ne doit pas varier au cours du temps [60]. Des phénomènes de floculation peuvent survenir et ceux-ci sont fonction de la variation du pH de la suspension et donc de la variation du potentiel zéta et de l'épaisseur de la double couche directement responsable de la floculation. Dans le cas des particules argileuses, la floculation peut être un processus réversible si cette dernière se produit suite à une augmentation de la concentration [60].

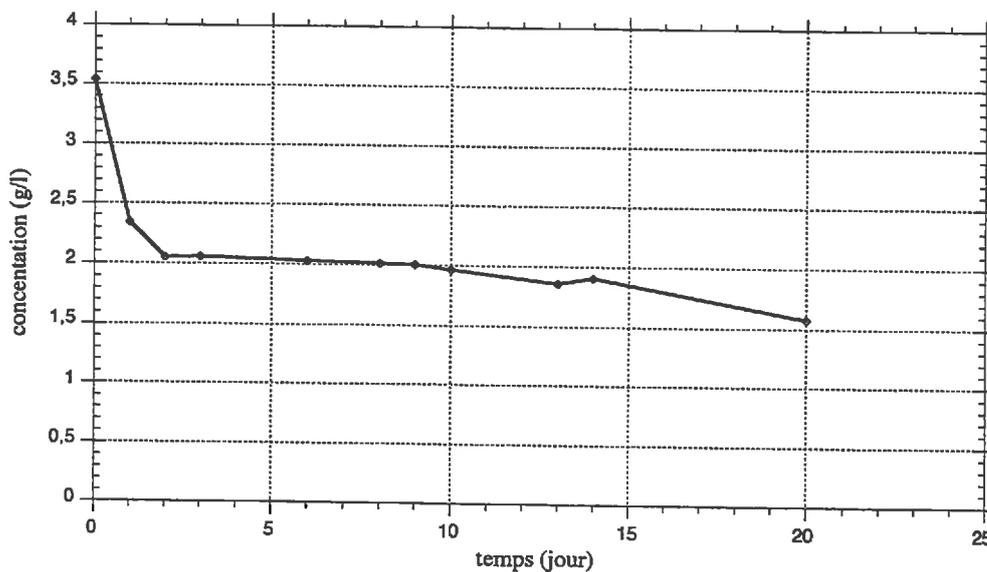


FIG. 2.9 - Variation de la concentration en bentonite en suspension dans l'eau en fonction du temps

La courbe de décantation (fig. 2.9) montre que la concentration de la suspension chute de moitié entre le premier jour et le troisième jour, et qu'ensuite elle reste pratiquement stable dans le temps. Ainsi, on considère cette suspension comme étant une suspension stable de bentonite colloïdale.

## 2.4 Description du dispositif expérimental

### 2.4.1 Préparation des échantillons

Les échantillons de billes (cf. 2.2.1) sont placés dans des colonnes en Plexiglas de forme cylindrique de diamètre intérieur  $D = 4,4$  cm. Ces empilements, d'une hauteur de 2,5 cm, sont obtenus par la préparation d'une suspension de billes et d'eau, versée dans la colonne équipée de la "tête de colonne" (fig. 2.10). Celle-ci permet le passage de l'eau ou de la suspension, mais pas le passage des billes (diamètre du filtre =  $10 \mu\text{m}$ ).

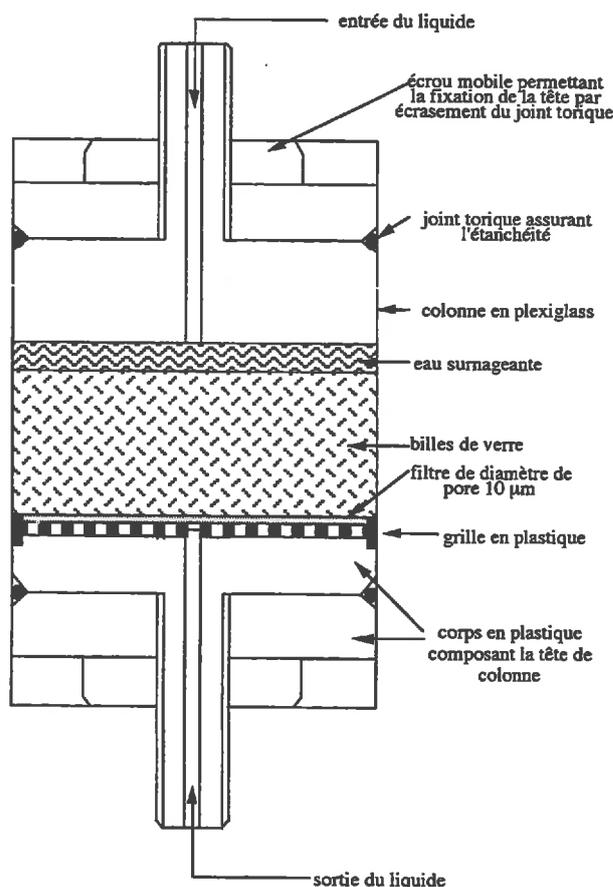


FIG. 2.10 - Description d'une colonne

Les proportions de chacune des entités sont : une masse de billes de 60 g qui représente un volume apparent de  $38 \text{ cm}^3$  (soit un volume des vides  $V_v = 12,54 \text{ cm}^3$ ) et un volume d'eau de  $20 \text{ cm}^3$ . Ce volume d'eau, supérieur au volume des vides, permet un bon mélange et une facilité de mise en place de la suspension de billes dans la colonne. L'excédent d'eau est évacué sous l'effet des forces de gravité, sans application de pression externe. La colonne est ensuite reliée au dispositif expérimental tel qu'il est schématisé figure 2.11.

La "tête de colonne" supérieure est reliée grâce un raccord en T à la fois à la conduite du liquide (eau ou suspension, suivant la position de la vanne) et au manomètre qui nous permet de mesurer la charge hydraulique au cours du cycle d'imbibition. Nous disposons aussi d'une balance pour mesurer les débits à la sortie du dispositif.

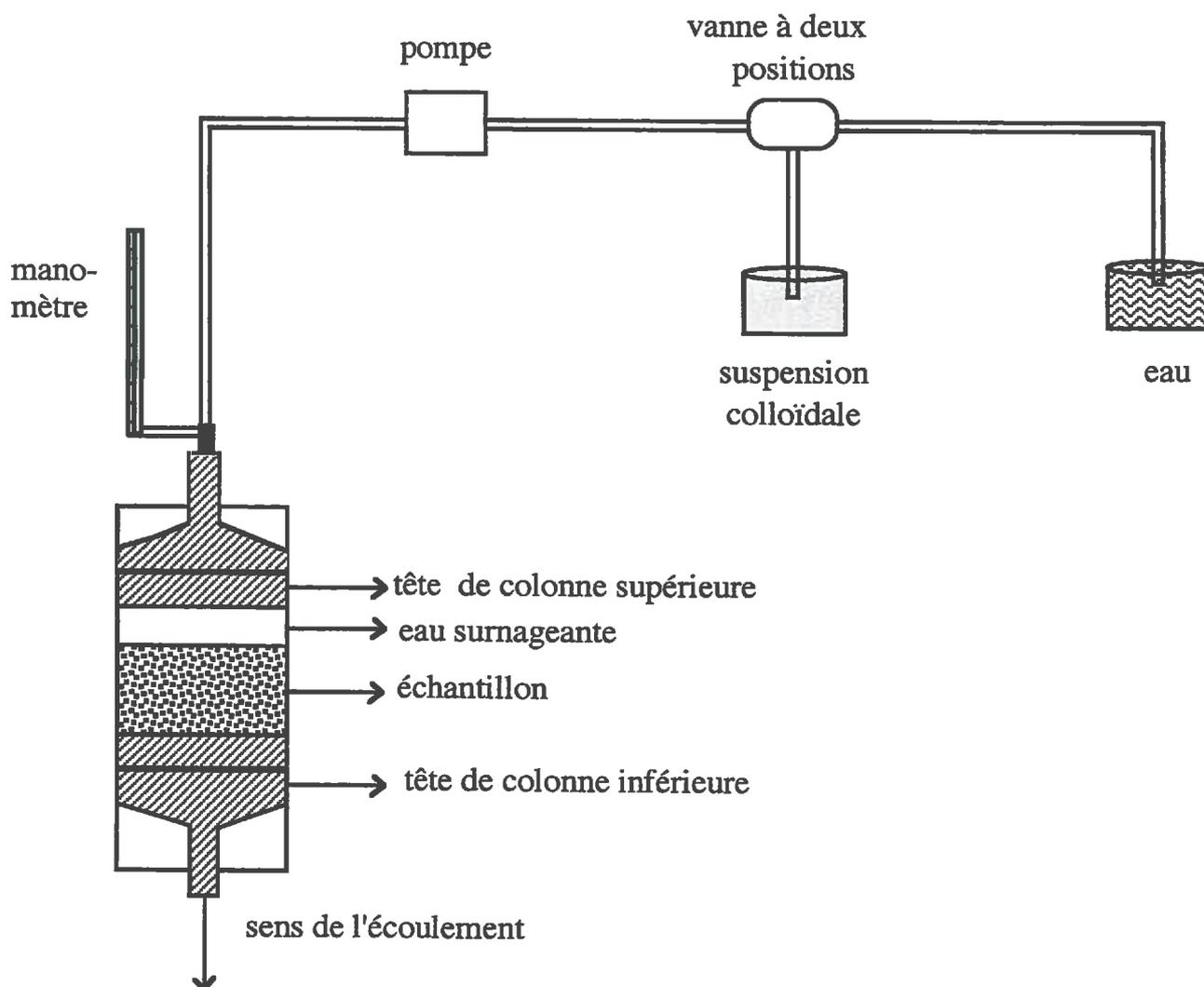


FIG. 2.11 - *Dispositif expérimental*

Les échantillons, une fois mis en place, sont rincés à l'eau distillée. En changeant la position de la vanne, on fait percoler la suspension colloïdale de bentonite sodique. La pompe permet d'ajuster le débit désiré. Ce dernier est maintenu constant pour toutes les manipulations à une valeur de  $10 \text{ cm}^3/\text{min}$ . Ainsi, on satisfait les conditions du régime laminaire, car le nombre de Reynolds est inférieur à 1 [77, 21] comme le montre le calcul ci-dessous :

$$R_e = \frac{dv\rho_w}{\eta_w} = \frac{Q}{S} \frac{d\rho_w}{\eta_w}$$

d : diamètre des particules,  
 v : vitesse de Darcy  
 $\rho_w$  : masse volumique de l'eau,  
 $\eta_w$  : viscosité dynamique de l'eau,  
 Q : débit,  
 S : section de l'échantillon.

En prenant un diamètre moyen  $\bar{d} = 70 \mu\text{m}$ , et  $\eta_w = 1,00 \cdot 10^{-2} \text{cm}^2/\text{s}$  à 20 °C. On obtient  $R_e = 8 \cdot 10^{-3} \ll 1$ .

Après imbibition, le dosage de l'argile au bleu de méthylène se fait par découpage de l'échantillon en tranches d'environ 4 mm d'épaisseur. Le but de cet essai est de suivre la distribution de l'argile au sein du massif à l'état humide et sec, ainsi que l'effet des cycles d'imbibition-séchage.

**Remarque :**

Lors des manipulations des échantillons, nous avons remarqué qu'en mettant directement en contact la tête de colonne supérieure avec la surface de l'échantillon, la perméabilité initiale mesurée pouvait varier d'un facteur 10 fois plus petit. Cette disparité de la conductivité hydraulique est due aux effets de compaction et de tassement lors de l'opération de serrage de la tête. Pour éviter ce problème, nous avons introduit une charge d'eau supplémentaire entre le massif et la tête supérieure (fig. 2.10).

## 2.4.2 Imbibition

Après rinçage de l'échantillon à l'eau distillée, on fait percoler environ  $300 \text{cm}^3$  de suspension de bentonite colloïdale à travers l'échantillon poreux (soit 25 fois le volume des pores de l'échantillon). La variation de la perméabilité du milieu poreux est contrôlée à plusieurs reprises durant l'écoulement : tous les  $100 \text{cm}^3$  de suspension écoulee, des mesures du débit et de la charge hydraulique sont effectuées.

## 2.4.3 Séchage

Le séchage de l'échantillon se fait uniquement par la face supérieure, en obturant la tête inférieure sans perturbation de l'échantillon (fig.2.12).

Deux méthodes de séchage sont utilisées :

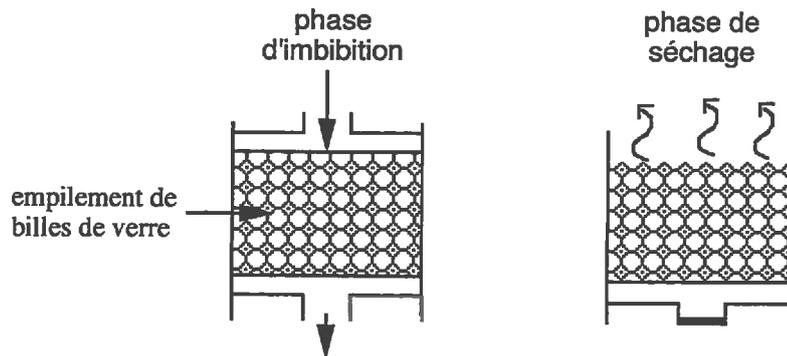


FIG. 2.12 - Cycle imbibition-séchage

### Séchage à l'air

Le séchage de l'échantillon de billes saturé en eau se déroule dans ce cas dans une pièce climatisée à 20°C. Les taux d'hygrométrie n'ont pas été enregistrés.

On peut distinguer sur la figure 2.13 les phases classiques d'un séchage convectif [78] : la première phase où la perte en poids moyen d'eau est linéaire (jusqu'à environ 180 heures). Cette période existe tant que la surface est alimentée en eau libre (par exemple par capillarité), il n'existe donc pas de front de séchage. Ensuite, vient la phase de ralentissement (après les 180 h), où diverses résistances du matériau aux transferts gèrent l'allure de la courbe.

Le processus de séchage à l'air est assez long. La figure 2.13 montre qu'il faut au moins 8 jours pour sécher complètement l'échantillon.

### Séchage à l'étuve

L'échantillon est placé, ouvert par le haut, dans une étuve maintenue à une température de 60°C. Cette valeur correspond à la température que pourrait atteindre la surface de la chaussée en période estivale. La durée de séchage est moins longue que le séchage à l'air : elle est de trois jours. Compte tenu de la durée du processus de séchage, et sachant que chaque échantillon subira plusieurs cycles d'imbibition-séchage, nous avons opté pour un séchage à l'étuve pour tous les échantillons. Les résultats et la comparaison des distributions des colloïdes pour chaque processus seront présentés dans les chapitres qui suivent.

#### 2.4.4 Découpage de l'échantillon

Le milieu modèle de billes de verre est un milieu pulvérulent sans aucune cohésion à l'état sec. Après humidification, grâce aux films d'eau entourant les billes, l'échantillon devient un peu plus cohésif. Néanmoins, cette résistance reste insuffisante pour les manipulations de l'échantillon.

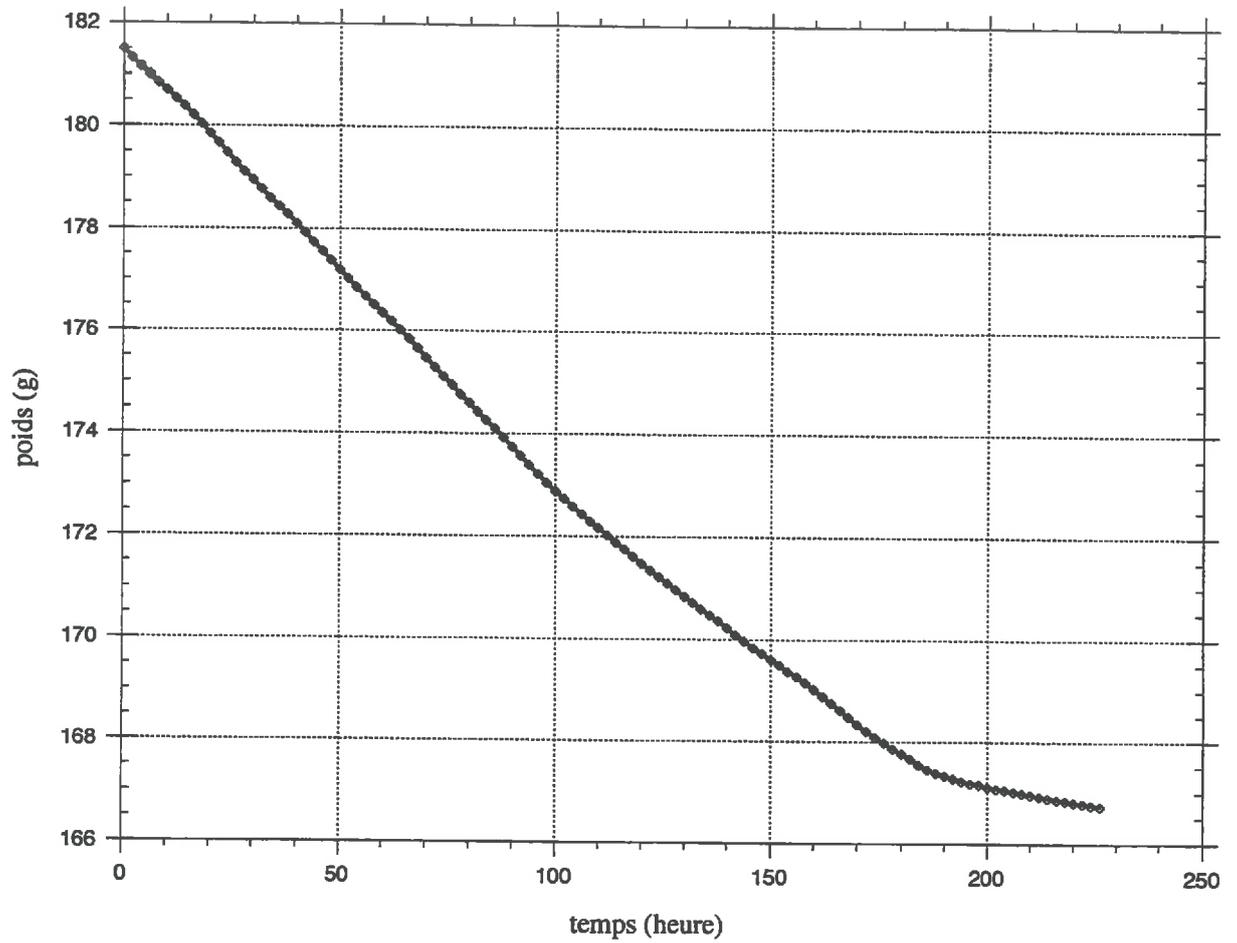


FIG. 2.13 - Séchage à l'air de l'échantillon poreux

L'opération de découpage à l'état humide consiste à pousser légèrement sur la tête inférieure et à couper à ras l'épaisseur qui dépasse de la colonne.

A l'état sec, le découpage précis est encore plus difficile, la technique pour le dosage de l'argile par couche consiste à gratter délicatement la couche puis à récupérer la poudre à l'aide d'une spatule.

## 2.5 Conclusions

Partant du raisonnement exposé dans l'introduction de ce chapitre et après réalisation d'essais comparatifs, nous avons modélisé le sable constituant le colmatant par des empilements de billes de verre de distribution granulométrique variant de 45 à 90  $\mu\text{m}$ . Ces échantillons vont subir des cycles d'imbibition par une suspension à 1g/l de bentonite sodique, et de séchage.

Vu la faible concentration en argile dans l'échantillon, nous avons utilisé une méthode de dosage des colloïdes par le bleu de méthylène. Cette méthode a l'avantage de donner avec une précision suffisante (2-5 %) la quantité d'argile retenue dans le massif poreux sans qu'il soit nécessaire de la séparer du reste de l'empilement. L'inconvénient majeur de cette méthode réside dans le fait de procéder par destruction de l'échantillon.

Comme le processus de séchage à l'air est long (cf. 2.4.3), nous avons décidé, après comparaison des résultats de distribution de l'argile dans les deux procédés, d'effectuer un séchage à l'étuve pour accélérer le phénomène.



## Chapitre 3

# Comportement de suspensions de bentonite dans un milieu poreux modèle

### 3.1 Introduction

Dans le but d'étudier le comportement de suspensions d'argile colloïdale dans un milieu poreux modèle au cours de cycles d'imbibition-séchage, nous avons découpé l'échantillon poreux modèle en tranches et dosé l'argile par la méthode au bleu de méthylène. Cette méthode donne avec une bonne précision les quantités d'argile, mais malheureusement on procède par destruction de l'échantillon. De plus, le cycle de séchage est assez long dans le temps, ce qui rend le nombre d'échantillons qu'il est possible d'étudier assez limité.

Au cours de l'écoulement, les particules argileuses traversent le milieu poreux sans y adhérer. Au séchage, elles migrent vers la surface de séchage où elles forment une croûte. Ce phénomène se répète à chaque cycle d'imbibition-séchage jusqu'au colmatage au bout de 26 cycles pour une suspension de bentonite à 1 g/l.

L'évolution de la perméabilité des empilements au cours des cycles d'imbibitions est calculée à partir des mesures de variations de débits et de charges hydrauliques (chapitre 2). Au chapitre 4, nous observerons les morphologies de dépôts au microscope à balayage électronique et nous mesurerons les paramètres mécaniques des échantillons au moyen du dispositif expérimental que nous avons mis au point (chapitre 5).

### 3.2 Distribution de colloïdes dans le milieu poreux au premier cycle d'imbibition-séchage

#### 3.2.1 Courbe d'effluent

Le système expérimental (chapitre 2) est composé d'une vanne à deux voies, l'une permettant le passage de l'eau et l'autre de la suspension. Après passage de l'eau dans l'empilement poreux (circulation d'environ trois fois le volume des pores), on change la position de la vanne et on laisse écouler la suspension. Nous connaissons la concentration initiale de la suspension ( $C_0 = 1g/l$ ). Nous mesurons la concentration de l'effluent à la sortie, on trace ensuite, la variation de cette dernière en fonction du volume écoulé divisé par le volume des vides (fig.3.1).

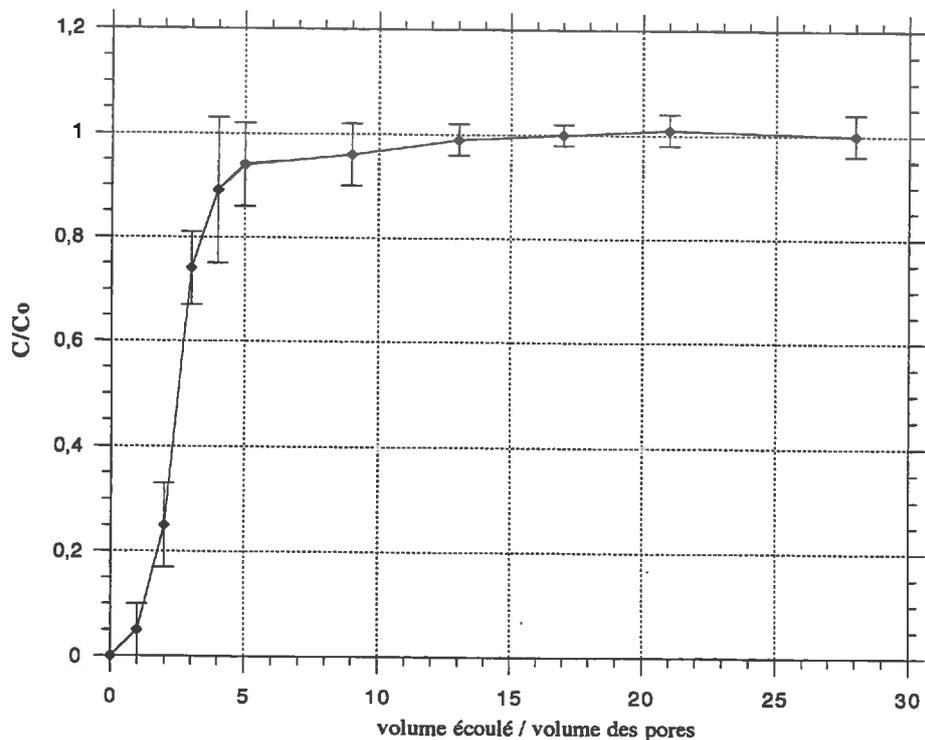


FIG. 3.1 - Variation de la concentration de l'effluent au premier cycle d'imbibition

La concentration de l'effluent augmente avec le volume écoulé au fur et à mesure de l'imbibition jusqu'à atteindre la concentration initiale. En effet, le volume d'eau qui occupait initialement la porosité de l'échantillon est remplacé par la suspension colloïdale. Il semble donc que les particules de bentonite traversent le milieu poreux sans interagir avec les grains de l'empilement (il n'existe pas de rétention, cf. 3.2.2).

### 3.2.2 Distribution des colloïdes à l'état humide

Après écoulement d'un volume de suspension de bentonite à 1 g/l égal à 300 cm<sup>3</sup> à travers l'échantillon, nous découpons ce dernier en tranches égales dans la mesure du possible. Leur teneur en argile est dosée au bleu de méthylène après séchage de chaque tranche, pendant une nuit, dans une étuve chauffée à 60 °C.

Les résultats obtenus sont illustrés par la figure 3.2, ils montrent que les colloïdes sont distribués uniformément dans l'échantillon au premier cycle d'imbibition. L'axe des abscisses représente la concentration en argile par unité de masse de billes, l'axe des ordonnées illustre la profondeur de l'échantillon.

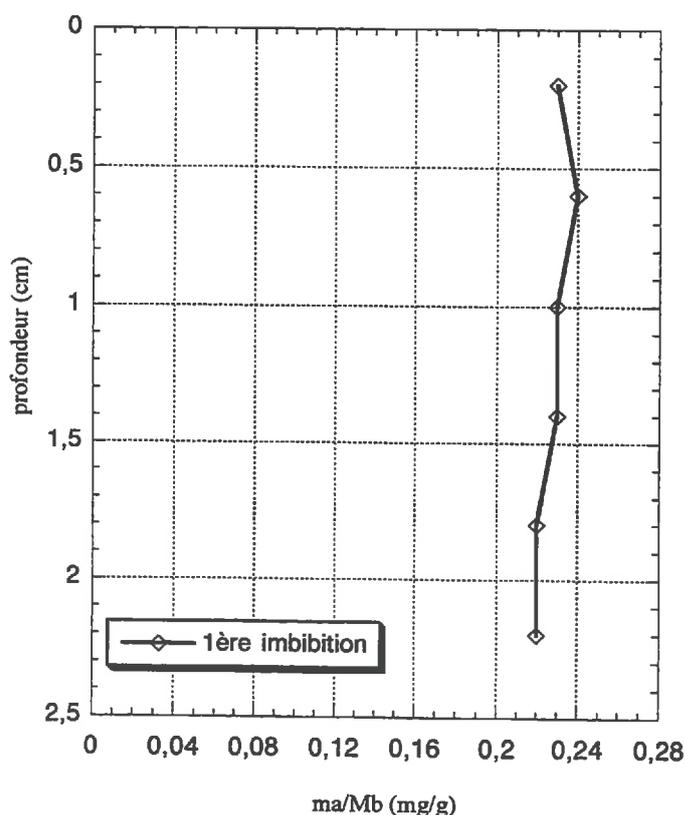


FIG. 3.2 - Distribution des colloïdes à l'état humide au premier cycle

On définit :

$$\bar{\sigma}_r = \frac{\text{masse d'argile retenue } (m_a)}{\text{masse de billes } (M_b)}$$

On trouve une valeur moyenne constante à l'état humide :

$$\bar{\sigma}_{rh} = 0,23 \text{ mg/g.}$$

Le bilan des concentrations montre que les particules colloïdales n'adhèrent pratiquement pas aux grains du milieu poreux, mais nagent dans le liquide interstitiel.

En effet, en estimant de l'ordre de 3 g la perte en masse de billes lors des différentes manipulations de l'échantillon (transvasement de la suspension de billes dans la colonne, découpage et accrochage des billes à la tête de colonne et aux parois après séchage), on trouve que la quantité totale d'argile retenue dans l'échantillon est égale à  $0,23 \times 57 = 13,11$  mg. On obtient, pour un volume des vides de  $12,54 \text{ cm}^3$ , une concentration uniforme sur toute la profondeur de l'échantillon égale à 1,05 g/l au lieu de 1 g/l.

On estime ainsi qu'au maximum 5% des particules argileuses sont retenues dans l'échantillon poreux. Ce pourcentage ainsi estimé est du même ordre de grandeur que l'erreur sur la méthode au bleu.

En prolongeant l'écoulement de la suspension dans le massif (en passant de  $300 \text{ cm}^3$  à  $600 \text{ cm}^3$ ) aucune rétention supplémentaire n'a été observée.

### 3.2.3 Distribution des colloïdes après séchage à l'air

Le séchage se fait dans une pièce à température et à degré d'hygrométrie ambiants. La courbe obtenue montrent qu'au cours du processus, il existe une migration et une concentration des particules minérales vers la partie supérieure (la première couche) de l'échantillon. En revanche, la concentration en argile dans le reste de l'échantillon (la masse) diminue d'environ un tiers, mais l'allure de la courbe reste uniforme :

- pour la première tranche :

$$\bar{\sigma}_{rs1} = 0,57 \text{ mg/g},$$

- dans la masse :

$$\bar{\sigma}_{rs2} = 0,16 \text{ mg/g}.$$

Ce résultat (fig. 3.3) montre en fait que, si on suppose que les particules colloïdales suivent le mouvement de l'eau, on déduit que le processus de séchage se fait en deux phases. Dans la première étape, la phase liquide se déplace de façon continue du bas de l'échantillon vers la surface de séchage, ce qui permet l'ascension des colloïdes en suspension vers l'interface d'échange air-solide. En revanche, la seconde étape du processus de séchage résulte du séchage d'une phase liquide discontinue sous forme de ménisques de suspension entre les grains (régime pendulaire). En effet, la pénétration de la phase gazeuse dans l'échantillon crée une discontinuité de la phase liquide et empêche par ce fait le mouvement de la suspension vers la surface libre de l'échantillon.

Le phénomène de migration des fines (argiles) vers la surface a déjà été observé dans les travaux de Brewer et Haldane sur des colonnes de sable fin (0,2-0,5 mm)

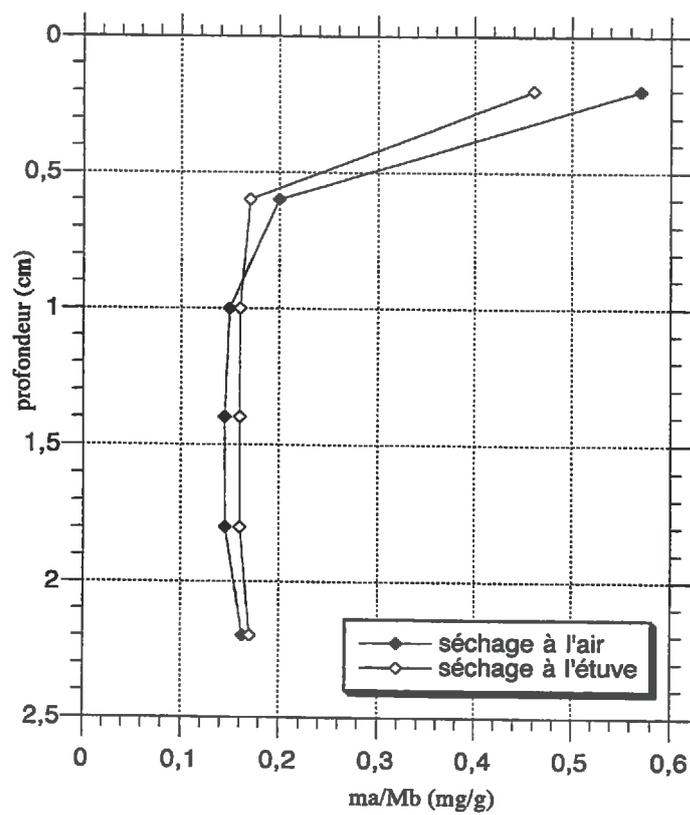


FIG. 3.3 - Comparaison des distributions de colloïdes après séchage à l'air et à l'étuve

séché à 60 °C [9]. Ces auteurs ont étudié d'une part le cas d'imbibitions répétées par des suspension d'argile et d'autre part, le cas d'un apport en continu de suspension par capillarité et séchage par la surface. En revanche, Dijkermann et al. [27] n'avaient rien observé de semblable lors de séchages prolongés par le haut des échantillons de sable saturés en continu (par capillarité pendant 7 jours) par une suspension d'argile : ils trouvent une distribution uniforme.

### 3.2.4 Distribution des colloïdes après séchage à l'étuve au premier cycle

Le dosage au bleu de méthylène de l'argile de l'échantillon de billes découpé en six tranches après séchage à l'étuve, donne la courbe suivante (fig.3.4) :

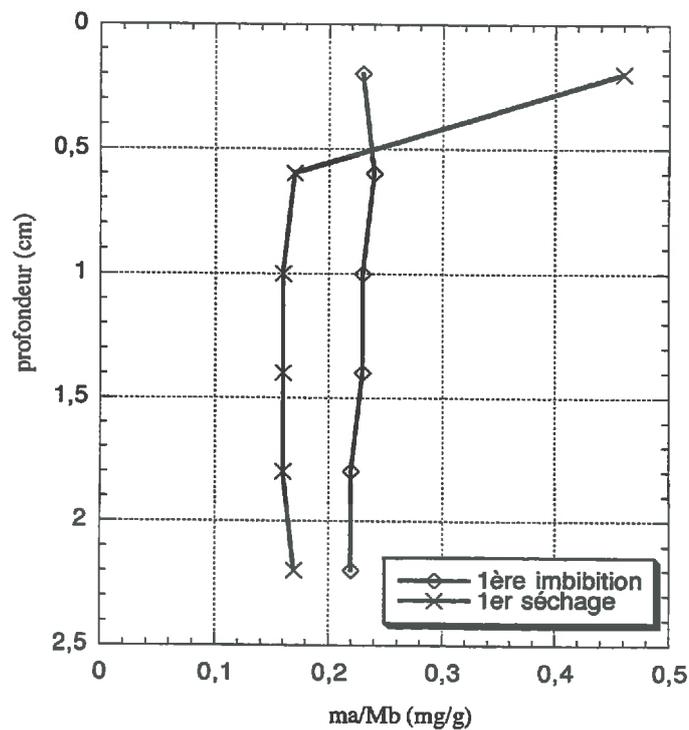


FIG. 3.4 - Comparaison des distributions des colloïdes au premier cycle de séchage-imbibition

On remarque, comme dans le cas du séchage à l'air, bien que l'argile soit uniformément répartie dans l'échantillon humide, qu'après un premier cycle de séchage, il se forme une couche très concentrée en argile (40 à 50 % de la quantité totale retenue) au voisinage de la surface de séchage (fig. 3.4). Le reste de l'échantillon s'appauvrit en colloïdes, tout en conservant une répartition uniforme de l'argile. On obtient :

- pour la première tranche :

$$\bar{\sigma}_{rs1} = 0,46 \text{ mg/g},$$

- dans la masse :

$$\bar{\sigma}_{rs2} = 0,16 \text{ mg/g}.$$

Les courbes du séchage de la suspension de colloïdes à l'air et à l'étuve (fig. 3.3) donnent des résultats tout à fait comparables bien que la vitesse du processus de séchage et la tension superficielle de l'eau ne soient pas les mêmes à 20° C et 60° C [66] ( $\sigma_{20^\circ\text{C}} = 72,75 \text{ mN/m}$  et  $\sigma_{60^\circ\text{C}} = 66,24 \text{ mN/m}$ ).

### 3.2.5 Suivi du séchage au banc gamma

Nous avons observé, après chaque cycle de séchage du massif poreux saturé par la suspension colloïdale, qu'une grande partie des particules minérales initialement uniformément réparties sur toute la profondeur de l'échantillon migrent vers la surface de séchage. Ce phénomène est-il dû à la présence des particules colloïdales qui préférentiellement se concentrent à l'interface liquide-gaz au cours du processus du séchage [44], ou est-il inhérent à l'empilement poreux et aux conditions aux limites imposées?

La méthode de suivi des variations de densité à l'aide du banc gamma (annexe E) nous permet à chaque instant de calculer la teneur en humidité en différents points du milieu poreux. Nous avons effectué deux types de mesures :

1. la variation de la teneur en eau d'un échantillon poreux imbibé avec de l'eau pure (fig. 3.5, 3.6),
2. la variation de la teneur en eau d'un échantillon poreux imbibé avec de la suspension colloïdale (fig. 3.7, 3.8).

En supposant en première approximation que la densité de la suspension est égale à la densité de l'eau et que la densité du milieu poreux est constante, on mesure la teneur en eau volumique en appliquant les formules suivantes :

L'atténuation du rayon gamma traversant l'échantillon à l'état humide est:

$$C_1 = C_0 e^{-x (\mu_w \rho_w \theta_w + \mu_s \rho_s \theta_s)}$$

$C_1$  : taux de comptage après passage du rayon gamma à travers l'échantillon,

$C_0$  : taux de comptage en l'absence de l'échantillon,

$x$  : épaisseur de l'échantillon,

$\mu_w$  : coefficient d'absorption massique de l'eau,

$\rho_w$  : masse volumique de l'eau,

$\theta_w$  : teneur volumique en eau,  
 $\mu_s$  : coefficient d'absorption massique du solide,  
 $\rho_s$  : masse volumique du solide,  
 $\theta_s$  : teneur volumique en solide.

L'atténuation du rayon à l'état sec est :

$$C_2 = C_0 e^{-x (\mu_{air} \rho_{air} \theta_{air} + \mu_s \rho_s \theta_s)}$$

En calculant le rapport de l'atténuation de l'état humide à l'état sec  $\frac{C_1}{C_2}$ , on peut déduire la teneur volumique en eau à tout instant du séchage :

$$\frac{C_1}{C_2} = e^{-(\mu_w \rho_w \theta_w)} \implies \theta_w = \frac{-\log(\frac{C_1}{C_2})}{\mu_w \rho_w}$$

Grâce à ces données, nous pouvons tracer soit la variation de la teneur en eau en fonction du temps (fig. 3.5, 3.7), soit les profils d'humidité (fig. 3.6, 3.8). Ces derniers montrent qu'il n'existe pas de front de séchage au cours du processus, bien que la teneur en humidité soit plus grande dans la masse que dans le fond de l'échantillon. En effet, la pression capillaire (de l'ordre de 2 m d'eau) est très grande devant la hauteur de l'échantillon (2,5 cm) et tend à équilibrer la répartition de l'eau sur toute la profondeur.

### Le séchage de l'échantillon imbibé d'eau

La figure 3.5 montre qu'au bout de quatre cycles de sept heures, la teneur en humidité est relativement constante sur toute la profondeur de l'échantillon. Au cycle suivant, l'humidité dans le fond de l'échantillon est plus faible que dans le reste du massif (fig. 3.6). Cet état se poursuit sur quelques cycles avant que les forces capillaires n'égalisent la distribution de l'eau dans l'échantillon. On atteint ainsi un état pendulaire, où la phase liquide est discontinue et où les billes sont reliées par des ménisques. A partir de ce moment, la distribution en humidité retrouve un profil constant jusqu'au séchage.

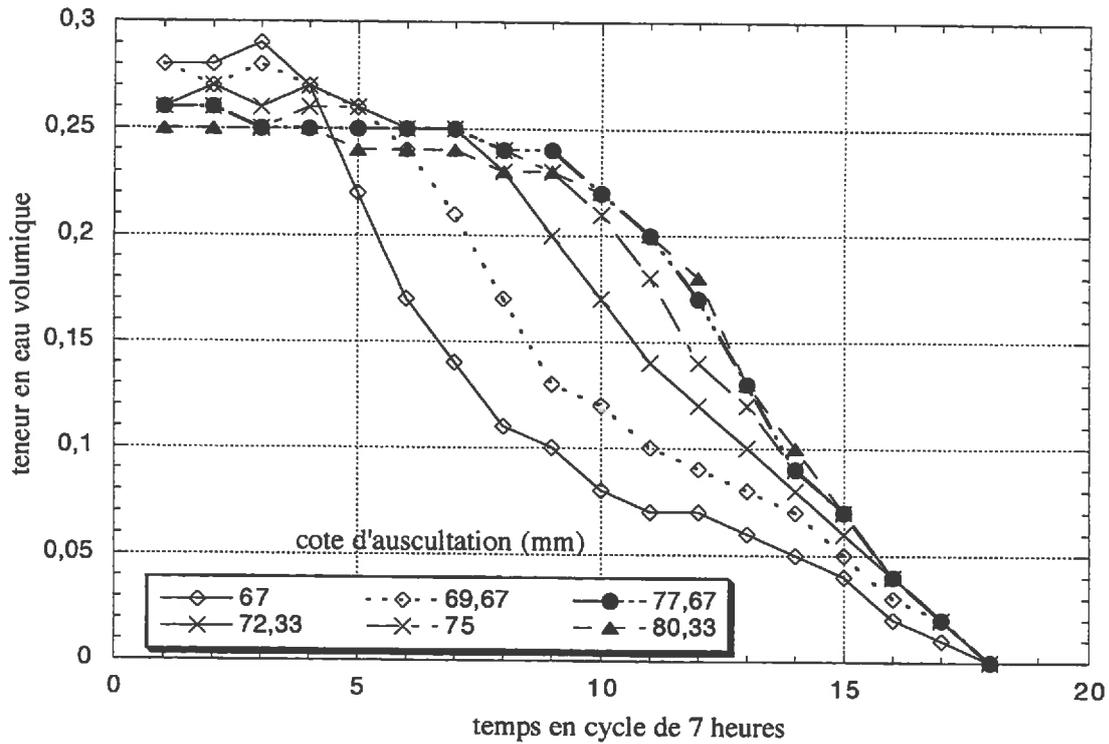


FIG. 3.5 - Variation de la teneur en eau en fonction du temps

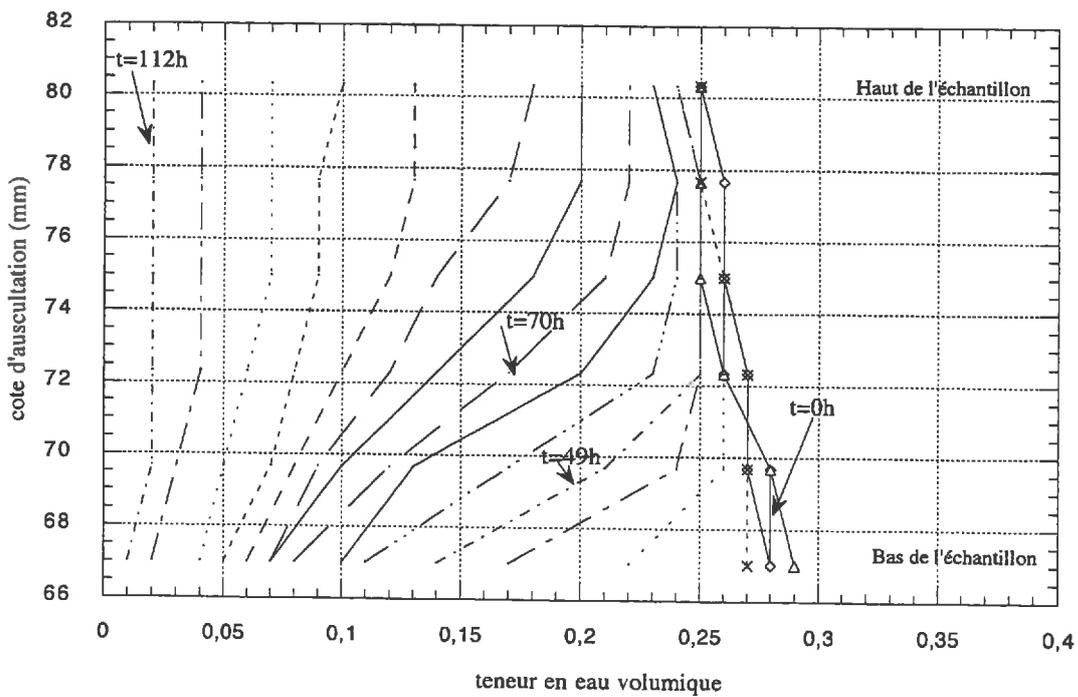


FIG. 3.6 - Profils d'humidité de l'échantillon imbibé d'eau

### Le séchage de l'échantillon imbibé de suspension de bentonite

La figure 3.7 montre que le processus de séchage de la suspension colloïdale est identique au processus de séchage de l'échantillon imbibé d'eau pure. Ainsi, le phénomène de migration des colloïdes vers la surface de séchage n'est pas spécifique à leur présence, mais en réalité les particules argileuses tendent à suivre le mouvement global de l'eau interstitielle. Ce mouvement se fait du bas vers le haut de l'échantillon inversement à la direction de pénétration du gaz.

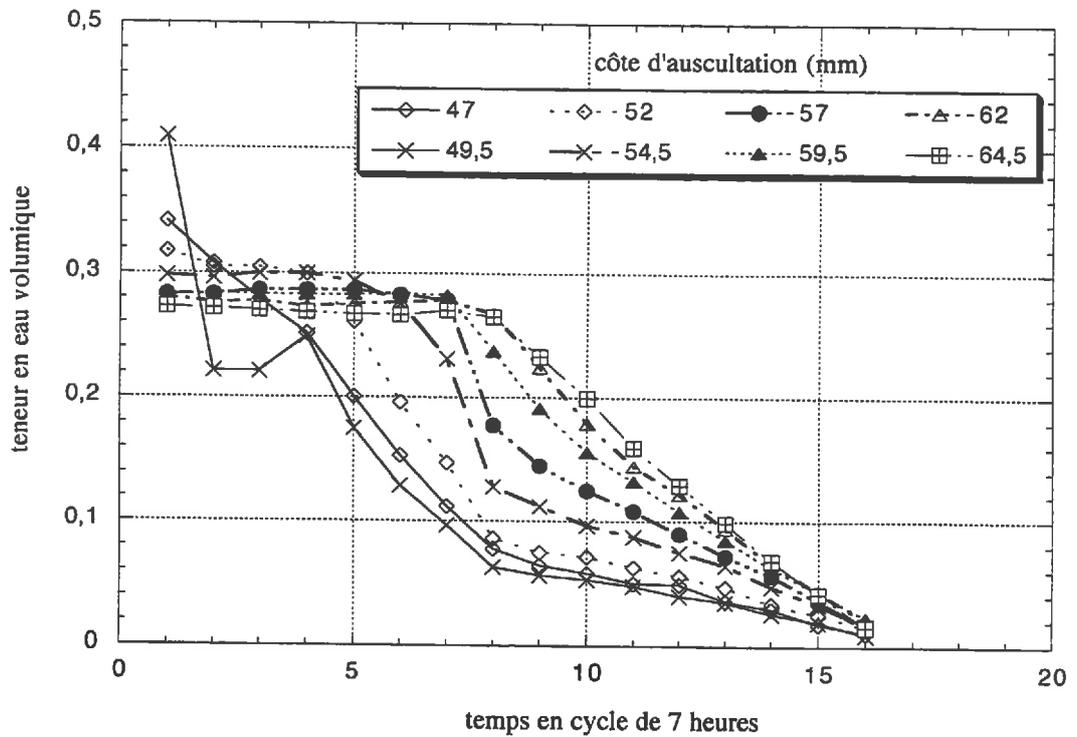


FIG. 3.7 - Variation de la teneur en suspension en fonction du temps

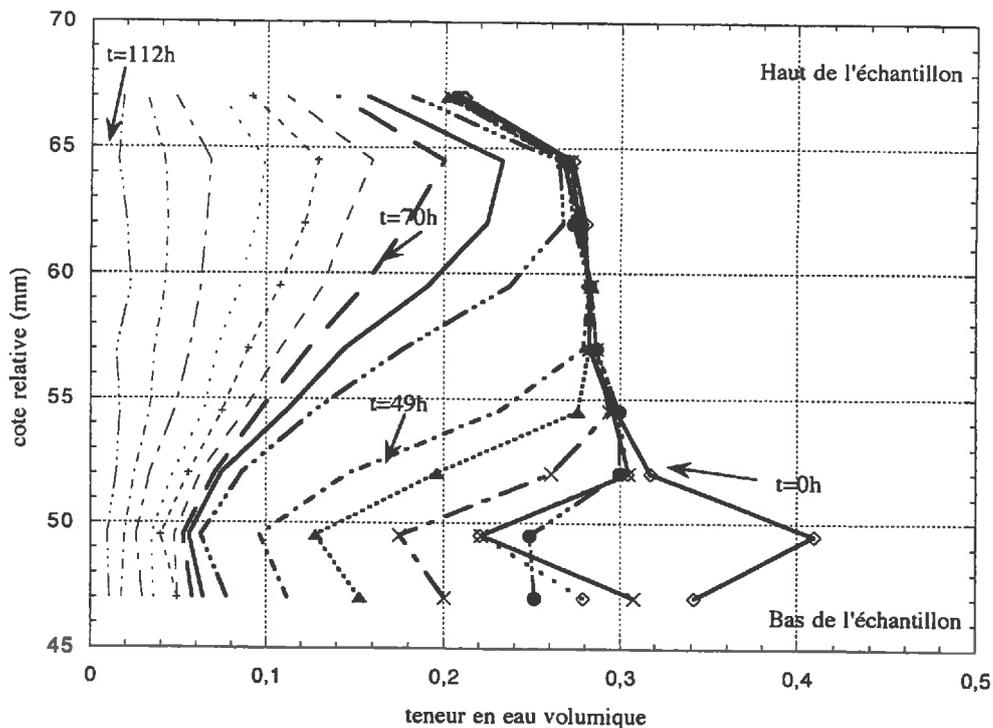


FIG. 3.8 - Profils d'humidité de l'échantillon imbibé de suspension

On distingue sur la figure 3.8, un point particulier (à la cote d'auscultation égale à 49,5 mm) qui d'une part contient au début du séchage une teneur en eau plus importante que le reste de l'échantillon et d'autre part dont la vitesse d'évaporation est plus rapide que le reste du massif. On suppose que cet état est dû à une porosité hétérogène qui est plus grande en ce point.

Afin de vérifier l'hypothèse ci-dessus, nous avons réalisé deux types d'essais. Le premier essai consiste à mesurer à l'aide du banc gamma les variations de la teneur en eau dans un empilement mixte de deux couches de billes de tailles différentes (une couche de billes de diamètres de 22-28 microns sur une couche de billes de 40-46 microns). Les résultats obtenus [113] sont illustrés par la figure 3.9. On remarque qu'au bout de vingt-six heures de séchage, la teneur en eau dans la partie basse de l'échantillon est légèrement plus grande que dans le haut (le point situé à la cote 105 mm étant l'interface entre les deux empilements). Au bout de soixante douze heures, la teneur en eau dans la couche formée de gros grains diminue plus rapidement que la couche de grains fins. Cette diminution est d'autant plus importante après cent soixante six heures, quand la teneur en eau dans la partie basse de l'échantillon est de l'ordre de 14 % tandis que la teneur en eau dans la partie haute de l'empilement est de l'ordre de 40 % (c'est pratiquement la teneur initiale en eau au début de l'essai). A partir de ce moment, tandis que la quantité d'eau dans l'empilement de gros grains se stabilise, le séchage se poursuit uniquement dans l'empilement fin.

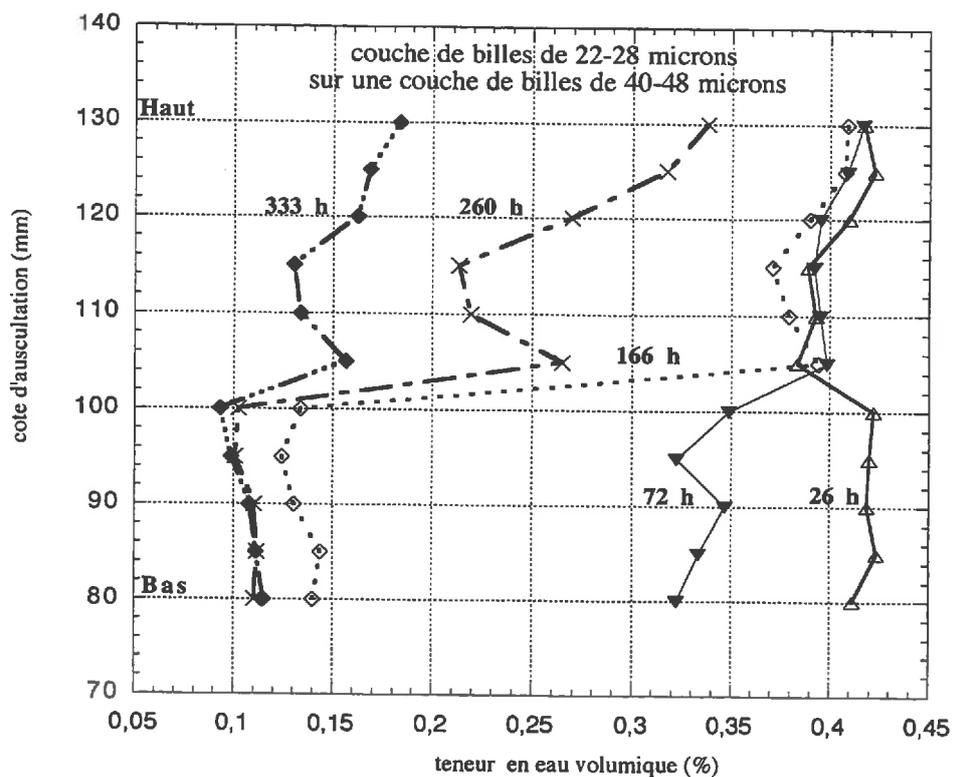


FIG. 3.9 - Profils d'humidité d'un empilement bicouche de billes imbibé d'eau

Le deuxième type d'essai est décrit dans le paragraphe ci-après.

### 3.2.6 Suivi du séchage dans une monocouche de billes macroscopiques

Le suivi, par caméra vidéo, du séchage d'un arrangement aléatoire de billes de dimension macroscopique (diamètre égal à 5 mm) recouvertes d'une suspension de bentonite à 10 g/l dans une boîte de Pétri, donne les séquences de séchage ci-dessous (fig. 3.10). Au début du processus du séchage (0-10 heures), le niveau de la suspension de bentonite baisse uniformément jusqu'à laisser apparaître une partie des billes. On remarque ensuite (après 14h) l'apparition, apparemment de façon aléatoire, de quelques discontinuités de la phase liquide (points sombres de la figure 3.10, 14h). Cet état se généralise peu à peu dans tout l'échantillon jusqu'au séchage. Une fois l'échantillon sec, on se rend compte que les zones, où les discontinuités sont apparues en premier, sont les zones de forte porosité (les pores de grandes dimensions).

Il semble donc, d'après les résultats de cet essai et de l'essai précédent, que la phase air pénètre dans l'échantillon préférentiellement par les zones de forte porosité, se crée des chemins dans les passages les plus larges pour atteindre le fond de l'échantillon.

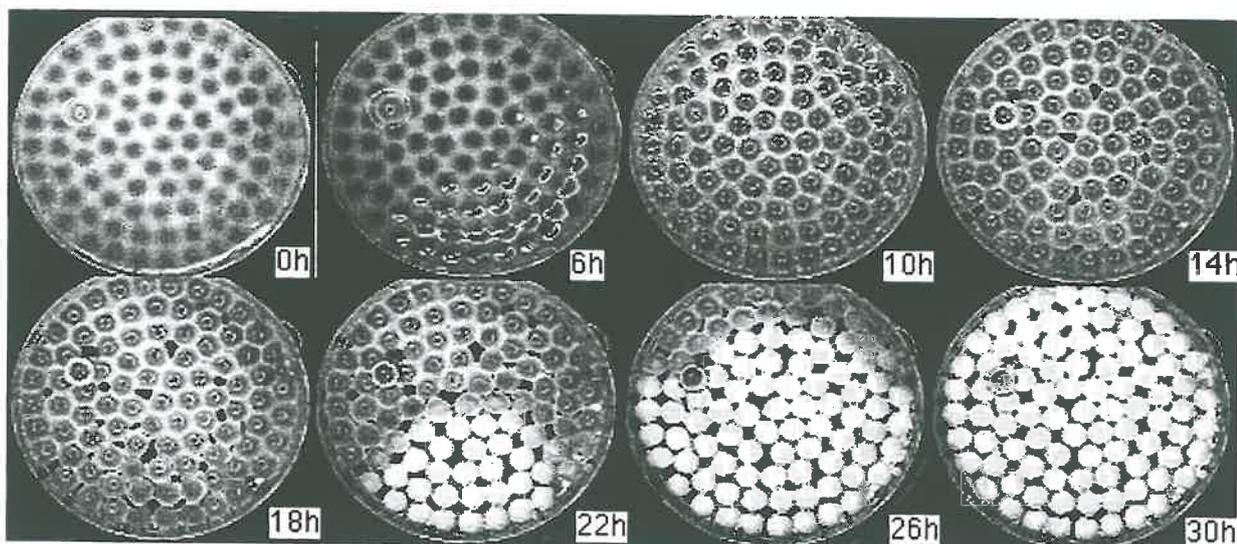


FIG. 3.10 - *Suivi d'un séchage de suspension de bentonite dans une monocouche de billes de 5 mm*

#### **Remarques :**

1 - A cause d'un léger défaut de planéité du support sur lequel sont posées les boîtes d'essais, le retrait du liquide au cours du séchage de l'empilement a tendance à commencer par le côté légèrement le plus élevé de l'empilement et avancer par la suite vers le côté le moins élevé.

2 - Cet essais sera repris au chapitre 4 pour l'étude des morphologies de dépôt.

### 3.2.7 Synthèse des résultats

L'étude du comportement de la suspension colloïdale sur un cycle d'imbibition-séchage dans un milieu poreux de billes de verre révèle une distribution uniforme des particules argileuses à l'état humide et un phénomène de migration et d'accumulation de l'argile (environ 40-50 % de la quantité totale) vers la surface libre après séchage : la concentration dans le reste de l'échantillon diminue mais garde néanmoins une distribution uniforme.

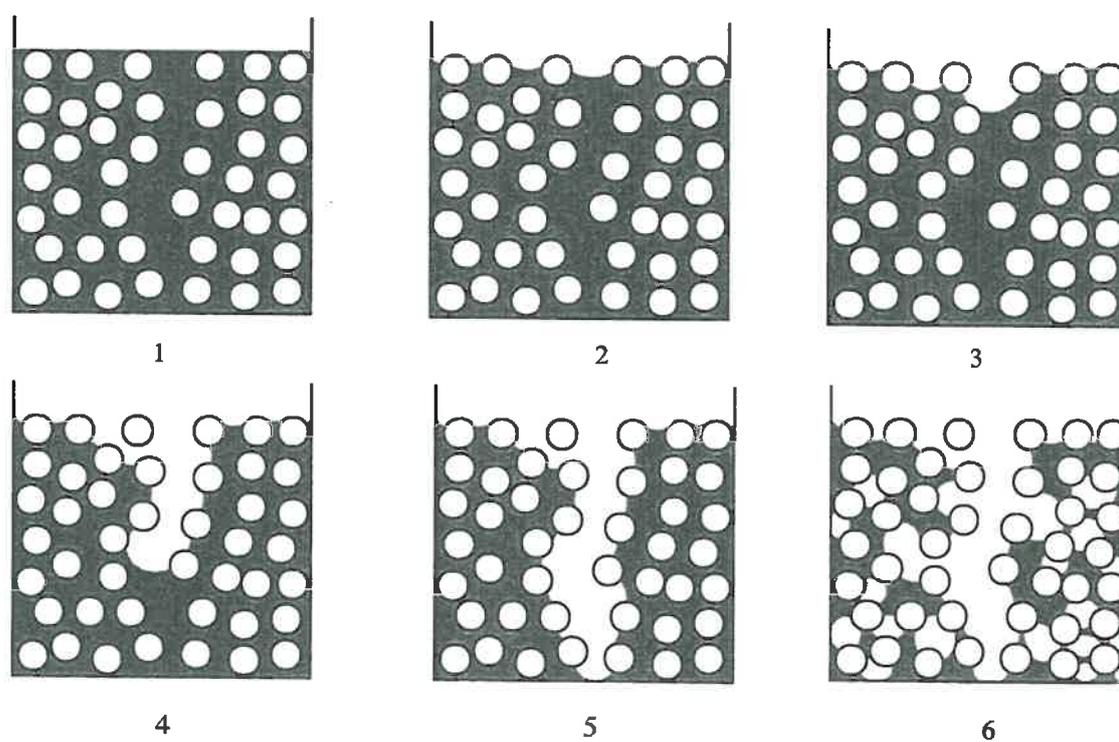
La migration de l'argile du bas de l'échantillon vers le haut, résulte du mouvement du liquide interstitiel qui se fait du bas vers le haut de l'échantillon au cours du séchage (cf. 3.2.5). En prenant en compte les diverses observations faites (cf. 3.2.5 et 3.2.6), nous allons tenter de représenter sur des schémas bidimensionnels les différentes étapes susceptibles de se produire au cours du séchage de l'empilement poreux (fig. 3.11) :

Dans un premier temps, l'air pénètre dans l'échantillon à travers les gros pores de la surface. En s'infiltrant dans le milieu, "des doigts d'air" s'agrandissent et chassent le liquide autour des grains vers la surface de séchage. Pour minimiser l'énergie, l'air passe préférentiellement par les chemins de grande porosité pour atteindre la profondeur du massif poreux.

Le séchage se poursuit, la teneur en liquide dans l'échantillon diminue et les forces capillaires commencent à apparaître. En effet, le faible volume du liquide restant dans l'empilement ne peut pas permettre la continuité de la phase liquide, la suspension se trouve alors piégée dans des ménisques entre les grains. Cette discontinuité empêche le liquide de se mouvoir vers le haut de l'échantillon, il reste donc piégé dans les ménisques jusqu'au séchage.

#### *Remarque :*

La présentation bidimensionnelle ne permet pas d'illustrer la continuité de la phase air dans le schéma numéro 6 de la figure 3.11, car les digitations d'air ne passent pas obligatoirement dans le plan de la figure.



- 1 - échantillon saturé en liquide ;
- 2, 3 - évaporation du liquide par la surface et pénétration de la phase gazeuse dans l'échantillon ;
- 4, 5 - avancement des doigts d'air jusqu'au fond de l'échantillon ;
- 6 - discontinuité de la phase liquide.

FIG. 3.11 - Schématisation du processus de séchage

### 3.3 Influence de la concentration sur la distribution des colloïdes dans le milieu poreux

De la même façon, nous avons préparé des suspensions à différentes concentrations (0,1 g/l, 2,5 g/l et 10 g/l). Nous avons ensuite effectué, suivant le même procédé, des cycles imbibition-séchage de ces différentes suspensions.

Les résultats ci-après montrent que le phénomène de migration des colloïdes vers la surface de séchage se répète pour les concentrations supérieures à 1 g/l. Par contre, la suspension à 0,1 g/l a un comportement différent.

#### 3.3.1 Distribution de la suspension à 0,1 g/l

On observe un comportement très différent de celui de la suspension à 1 g/l. En effet, la courbe 3.12 montre que la répartition en argile, aux états sec et humide, est plus ou moins quelconque sur la profondeur du massif. Néanmoins, il existe une concentration plus forte en surface d'évaporation.

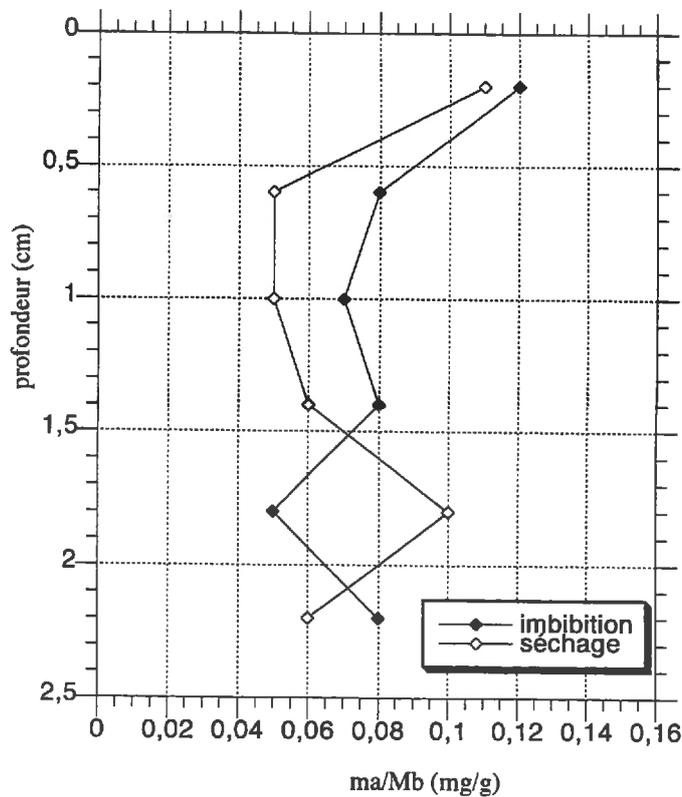


FIG. 3.12 - Comportement de la suspension à 0,1 g/l sur un cycle d'imbibition-séchage

En appliquant le même raisonnement que pour la suspension de 1 g/l, la quantité totale d'argile retenue devrait être dix fois plus petite. En examinant

les résultats de la figure 3.12, on se rend compte que la rétention  $\sigma_{h,s}$  est environ quatre fois plus importante que la valeur attendue ( $\sigma_{h, totale} = 4,4$  mg au lieu de 1,3 mg). Il s'agirait donc d'un phénomène de rétention par interaction entre les particules argileuses et les grains du milieu poreux.

### 3.3.2 Distribution de la suspension à 2,5 g/l

Nous obtenons sur un cycle d'imbibition-séchage les courbes suivantes :

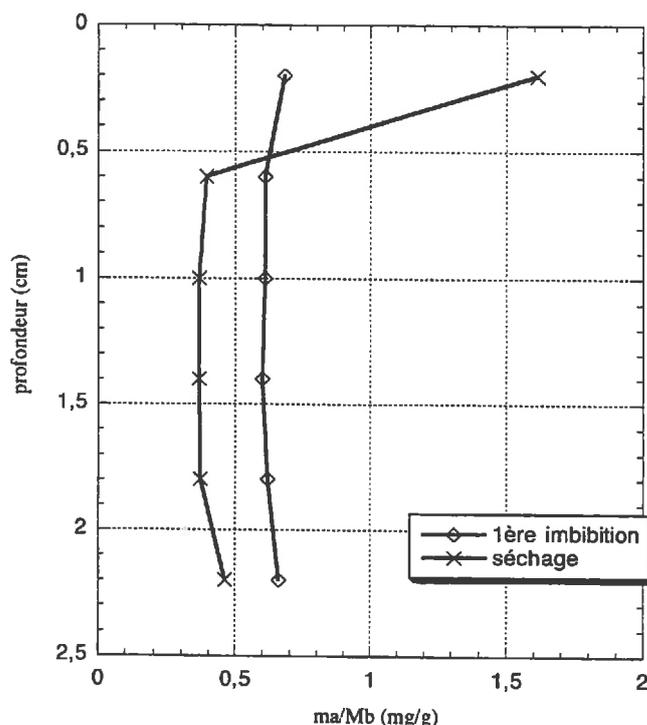


FIG. 3.13 - Comportement de la suspension à 2,5 g/l au cours d'un cycle d'imbibition-séchage

Ainsi la suspension à 2,5 g/l se comporte de la même façon que la suspension à 1 g/l : une distribution uniforme de l'argile à l'état humide, ensuite une migration de colloïdes vers la surface de séchage. Cependant, dans ce cas les quantités retenues en argile dans l'échantillon sont plus importantes que les quantités retenues dans le cas de la suspension à 1 g/l.

On trouve à l'état humide :  $\bar{\sigma}_{rh} = 0,63$  mg/g,

soit un rapport environ 2,5 fois plus grand que pour la suspension à 1 g/l.

Au séchage, on calcule  $\bar{\sigma}_{rs}$  moyen :

- pour la première tranche:  $\bar{\sigma}_{rs} = 1,61 \text{ mg/g}$ ,
- dans la masse:  $\bar{\sigma}_{rsmasse} = 0,39 \text{ mg/g}$ .

### 3.3.3 Distribution de la suspension à 10 g/l

Les courbes obtenues à l'issue d'un cycle d'imbibition-séchage par la suspension d'argile à 10 g/l sont les suivantes :

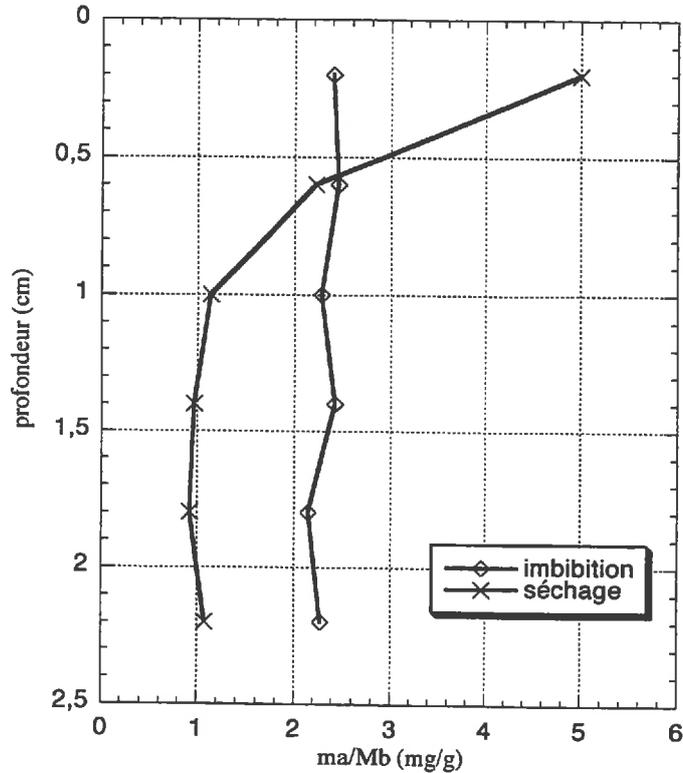


FIG. 3.14 - Comportement de la suspension à 10 g/l au cours d'un cycle d'imbibition-séchage

A l'état humide,  $\bar{\sigma}_{rh}$  moyen sur toute la profondeur est de  $\bar{\sigma}_{rh} = 2,34 \text{ mg/g}$ .

Au séchage :

- pour la première tranche:  $\bar{\sigma}_{rs} = 5,00 \text{ mg/g}$ ,
- dans la masse:  $\bar{\sigma}_{rs} = 1,27 \text{ mg/g}$ .

Ainsi, le phénomène de migration des colloïdes se répète comme précédemment avec des taux de rétention proportionnels à la concentration de 1g/l.

	Rétentions (mg/g)		
	C=1 g/l	C=2.5 g/l	C=10 g/l
Imbibition $\sigma_{rh} =$	0,23	0,63	2,34
Séchage $\sigma_{rs,1ere\ tranche} =$	0,46	1,6	5
$\sigma_{rs,masse} =$	0,16	0,4	1,27

TAB. 3.1 - Rétentions dans le milieu poreux pour les différentes concentrations

**Remarque :**

On constate que la résistance mécanique de la couche de surface des échantillons imbibés par la suspension à 10 g/l est très grande par rapport à la même couche après dix cycles d'imbibition-séchage pour une concentration de 1 g/l et quatre cycles d'imbibition-séchage pour une concentration de 2,5 g/l. Cette grande résistance est due certainement au fait qu'une quantité très importante en argile se concentre en une seule fois dans la porosité de la couche et crée des liens rigides entre les grains. Ces liens, par rapport à ceux formés en plusieurs cycles d'imbibition-séchage, ne subissent pas de perturbations dues à la succession des réimbibitions des échantillons : c'est pourquoi, ils sont plus résistants.

### 3.3.4 Synthèse des résultats

Nous avons étudié dans la partie précédente le comportement de la suspension de bentonite colloïdale à différentes concentrations (0,1 g/l, 1 g/l, 2,5 g/l et 10 g/l) sur un cycle d'imbibition-séchage dans un empilement de billes de verre de diamètres de 45-90 microns.

Mise à part la suspension à 0,1 g/l, les comportements des autres suspensions sont identiques : une distribution uniforme de l'argile à la première imbibition, suivie par une migration au séchage d'environ 40 % de la quantité totale d'argile vers la couche supérieure de l'empilement. Les différents bilans des quantités d'argile retenues montrent qu'il n'existe pas de phénomène de rétention des particules argileuses pendant l'écoulement, mais que celles-ci adhèrent aux billes au cours du processus de séchage.

De plus, les résultats (tableau 3.1) montrent qu'il existe une proportionnalité dans les distributions entre les suspensions à 1 g/l, à 2,5 g/l et à 10 g/l.

Cette proportionnalité des distributions des différentes concentrations de la

suspension, nous donne la possibilité d'accélérer le processus de rétention après séchage. En effet, les cycles d'imbibition-séchage sont assez longs (3 jours pour chaque cycle de séchage), les concentrations en colloïdes augmentent de façon linéaire avec le nombre de cycle (cf. 3.5). Comme il n'est pas possible d'augmenter la température, nous avons utilisé la concentration de 2,5 g/l pour évaluer la distribution et la perméabilité à long terme. Les résultats concernant ces deux paramètres sont décrits dans les paragraphes suivants. La possibilité de remplacer la suspension à 1 g/l par la suspension très concentrée à 10 g/l est éliminée à cause de la raison évoquée ci-dessus (cf. 3.3.3, remarque).

## 3.4 Second cycle

### 3.4.1 Courbe d'effluent

A partir du second cycle, on introduit directement la suspension sans rinçage préalable à l'eau comme au premier cycle. De la même façon, on trace la courbe de l'effluent (fig.3.15).

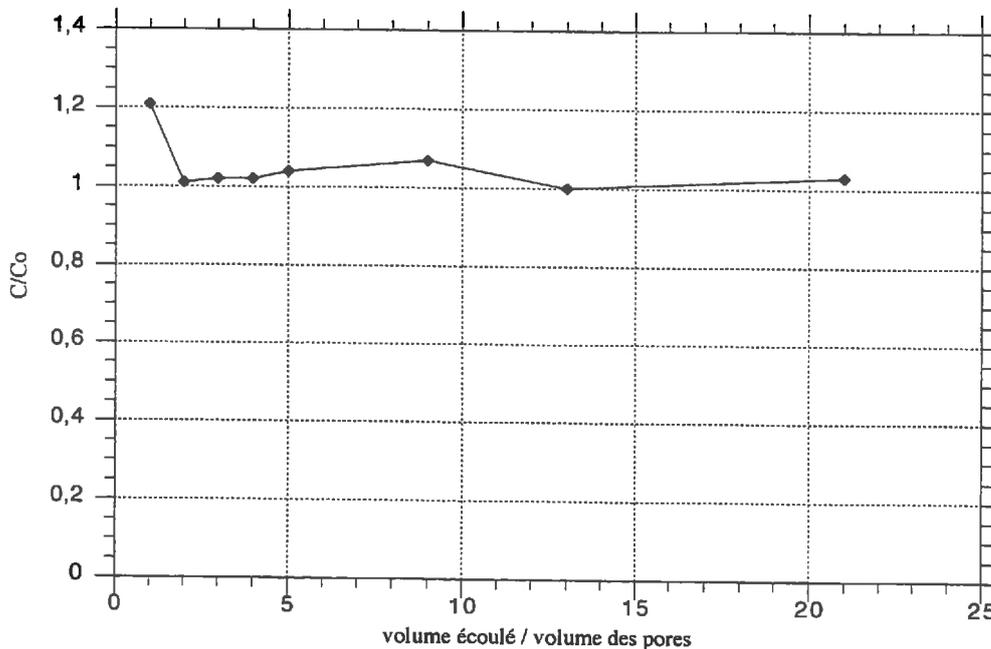


FIG. 3.15 - Courbe d'effluent au deuxième cycle

Après un temps assez court, on atteint une concentration constante. La concentration légèrement plus forte au début de l'écoulement est due :

1. soit à ce que la bentonite est une argile très active (surface spécifique totale de l'ordre de  $700 \text{ m}^2/\text{g}$ ), elle possède une grande capacité d'absorption d'eau sur sa surface interne et externe. A l'arrivée de la suspension, les particules d'argile, déjà séchées sur les billes au premier cycle, absorbent une quantité importante d'eau de la suspension et augmentent ainsi sa concentration à la sortie de l'échantillon,
2. ou soit à ce que, pour se frayer un chemin, la suspension réentraîne les particules agglomérées dans les points de passage, sans être solidement liées aux billes après le processus de séchage. La quantité de particules réentraînées est assez faible, car le retour à la concentration initiale est atteint très rapidement.

### 3.4.2 Distribution des colloïdes après réimbibition

Les résultats obtenus, par découpage de l'échantillon et dosage de l'argile par la méthode au bleu, à l'issue d'un deuxième cycle d'imbibition montrent que l'argile retenue dans l'échantillon au premier cycle est quasiment immobile pendant la réimbibition : le massif poreux s'enrichit uniformément en colloïdes sur toute la profondeur (fig. 3.16).

A l'état humide

- pour la première tranche :  $\bar{\sigma}_{rh} = 0,75 \text{ mg/g}$ ,

- dans la masse :  $\bar{\sigma}_{rh} = 0,44 \text{ mg/g}$ .

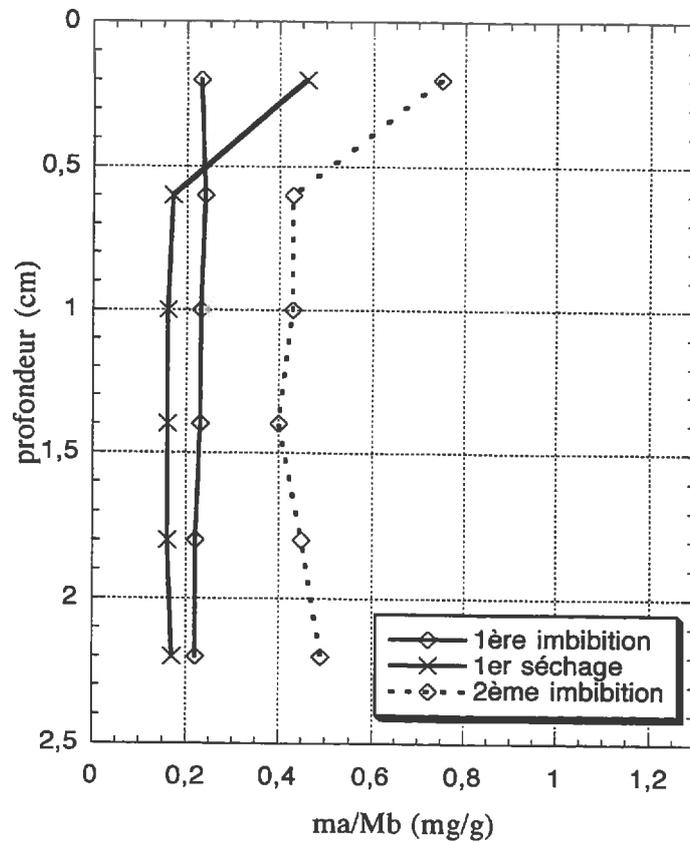


FIG. 3.16 - *Distribution des colloïdes après réimbibition*

### 3.4.3 Distribution des colloïdes après un second séchage à l'étuve

Le second séchage induit lui aussi une migration des colloïdes en surface de séchage. Il apparaît une augmentation de la concentration à la surface et sur toute la profondeur du massif (fig.3.17).

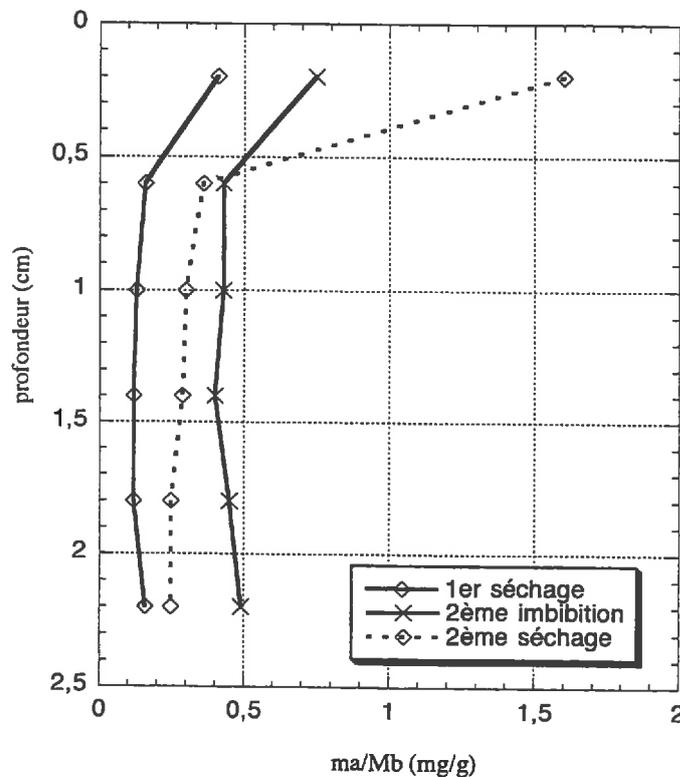


FIG. 3.17 - Distribution des colloïdes aux premier et deuxième cycles de séchage

Après séchage :

- pour la première tranche :  $\bar{\sigma}_{rs} = 1,63 \text{ mg/g}$ ,
- dans la masse :  $\bar{\sigma}_{rs} = 0,32 \text{ mg/g}$ .

## 3.5 Cycles suivants d'imbibition-séchage

Les phénomènes d'enrichissement et de migration des particules colloïdales se répètent à chaque cycle d'imbibition-séchage, après lesquels, on obtient les courbes de la figure 3.18 et 3.19.

Ces résultats mettent en évidence l'apparition de deux parties distinctes dans l'empilement poreux : la surface de séchage (la croûte) avec une concentration

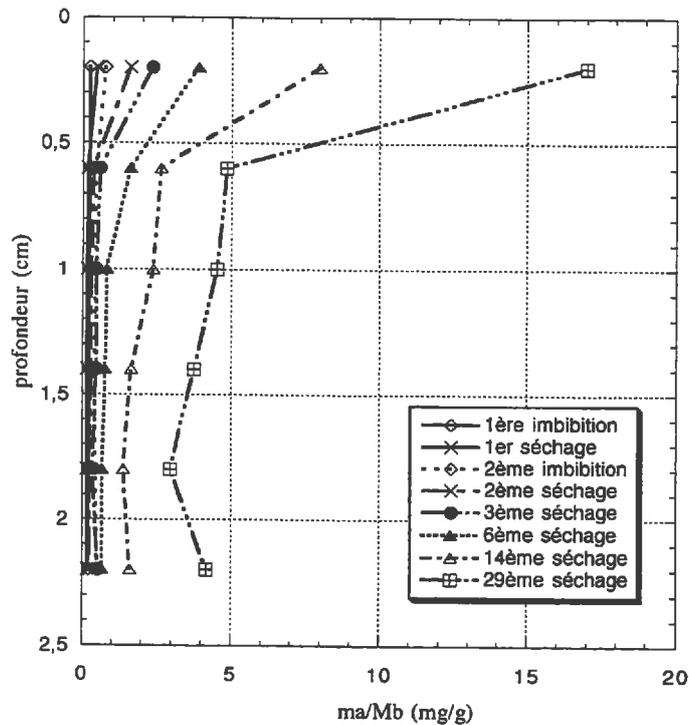


FIG. 3.18 - *Distribution des colloïdes aux différents cycles de séchage (1 g/l)*

très importante en argile et le reste du massif (la masse) avec une concentration uniforme sur la profondeur. Néanmoins, à partir du sixième cycle, on note le décalage de la concentration dans la seconde tranche de l'échantillon par rapport à celle des quatre dernières tranches.

La relation entre le nombre de cycles et les quantités moyennes en argile retenues dans chaque partie est illustrée par la courbe 3.20.

La concentration dans la masse de l'échantillon et dans la croûte augmente linéairement avec le nombre de cycles. Ainsi, on retient la même quantité d'argile à chaque cycle d'imbibition-séchage. De plus, on remarque que la concentration en argile dans la surface de séchage augmente très rapidement par rapport au reste de l'échantillon. En effet, au cours de chaque cycle de séchage, l'argile colloïdale migre vers la surface de séchage pour former, comme on le verra au chapitre 4, "un ciment argileux" qui se déposera au début sur la surface de séchage (les 2 ou 3 premières rangées de billes) et au fur et à mesure sur les sections directement situées sous cette surface jusqu'à atteindre 4-5 mm. Après plusieurs cycles, si le colmatage n'intervient pas, on pourrait s'attendre à long terme à ce qu'une concentration uniforme soit atteinte sur toute la profondeur.

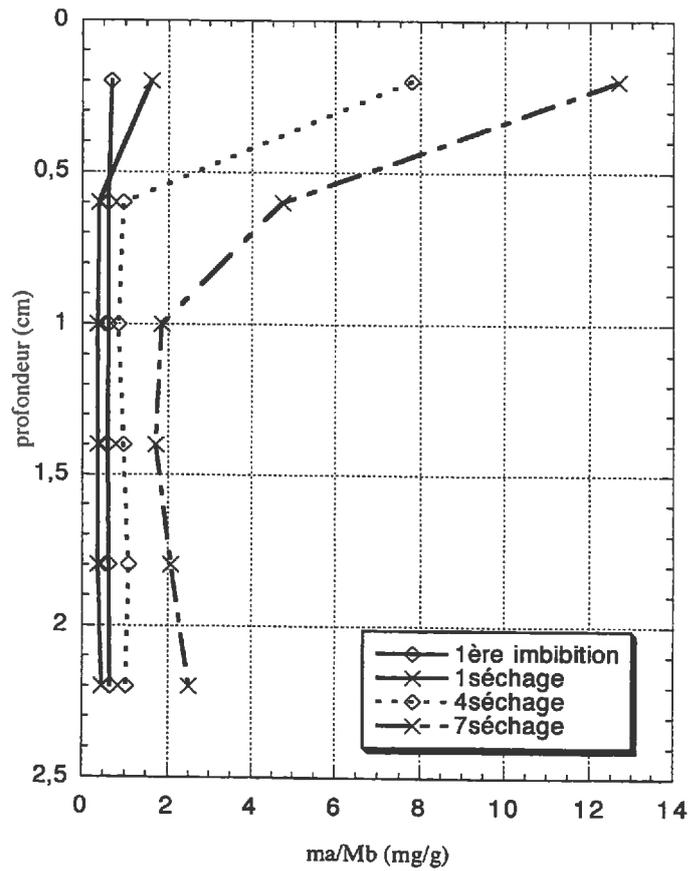


FIG. 3.19 - Distribution des colloïdes aux différents cycles de séchage (2,5 g/l)

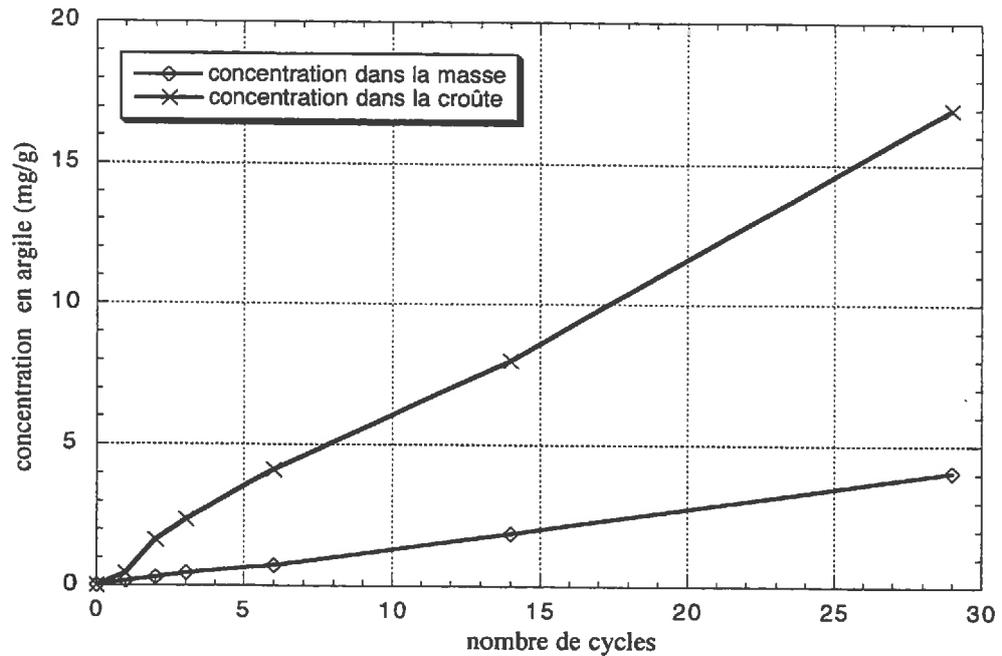


FIG. 3.20 - Relation entre la quantité d'argile retenue et le nombre de cycles

### 3.6 Variation de la perméabilité

Le coefficient de perméabilité est un paramètre déterminant de l'état de colmatage des échantillons poreux. En effet, plus l'échantillon est colmaté, plus sa perméabilité et sa porosité sont réduites. Grâce à notre montage équipé d'un manomètre et d'une balance, nous pouvons mesurer respectivement la charge et le débit hydraulique. Par la loi de Darcy, nous calculons la variation de la perméabilité moyenne en fonction du débit et de la charge.

C'est G.H.Ph. Darcy qui, en 1856 à Dijon, observa expérimentalement la relation entre le débit d'écoulement à travers un matériau poreux et la perte de charge qui lui est associée. Il déduit la relation exprimant le débit total  $Q$  transitant au travers de la colonne comme le produit de sa section  $S$ , du rapport de la différence de charge totale  $\Delta H$  existant aux extrémités à sa longueur  $L$  et d'un coefficient de proportionnalité  $k$  appelé perméabilité de Darcy ou conductivité hydraulique.

$$Q = k S \frac{\Delta H}{L} [m^3/s]$$

Dans le cas d'un écoulement unidimensionnel dans un milieu homogène et isotrope, la loi reliant le vecteur vitesse au vecteur gradient hydraulique s'exprime par la relation :

$$\vec{v} = k \vec{i} = -k \overrightarrow{\text{grad}} h.$$

Le paramètre  $k$  traduit l'effet de résistance dû aux forces de frottement, ce

n'est pas une caractéristique de la matrice solide, car il dépend aussi de la viscosité du fluide. On définit la perméabilité intrinsèque  $K$  ne dépendant que du milieu poreux par :

$$K = \frac{k \eta_w}{\rho_w g}$$

où  $K$  a les dimensions d'une surface, elle s'exprime aussi en darcy ( $1 \text{ darcy} = 0,987 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^2$ ) et  $\eta_w$  étant la viscosité dynamique du liquide, variable avec la température.

Les mesures de débit et de charge sont effectuées à trois reprises au cours de l'écoulement (tous les  $100 \text{ cm}^3$ ). Il est à noter que sur la courbe de variation de la perméabilité (fig. 3.21), le point tracé à la fin d'un cycle ne se confond pas avec la première mesure du cycle suivant : la perméabilité est évaluée après écoulement de  $100 \text{ cm}^3$  à partir du début de l'imbibition.

Nous avons tracé la variation de la perméabilité moyenne au cours de chaque cycle d'imbibition (fig. 3.21). On constate une réduction linéaire aussi bien pour la suspension à  $1 \text{ g/l}$  que pour la suspension à  $2,5 \text{ g/l}$  en argile. Néanmoins, le colmatage par la suspension à  $2,5 \text{ g/l}$  intervient au bout de 6 cycles tandis que le colmatage par la suspension à  $1 \text{ g/l}$  est atteint au bout de 26 cycles d'imbibition-séchage.

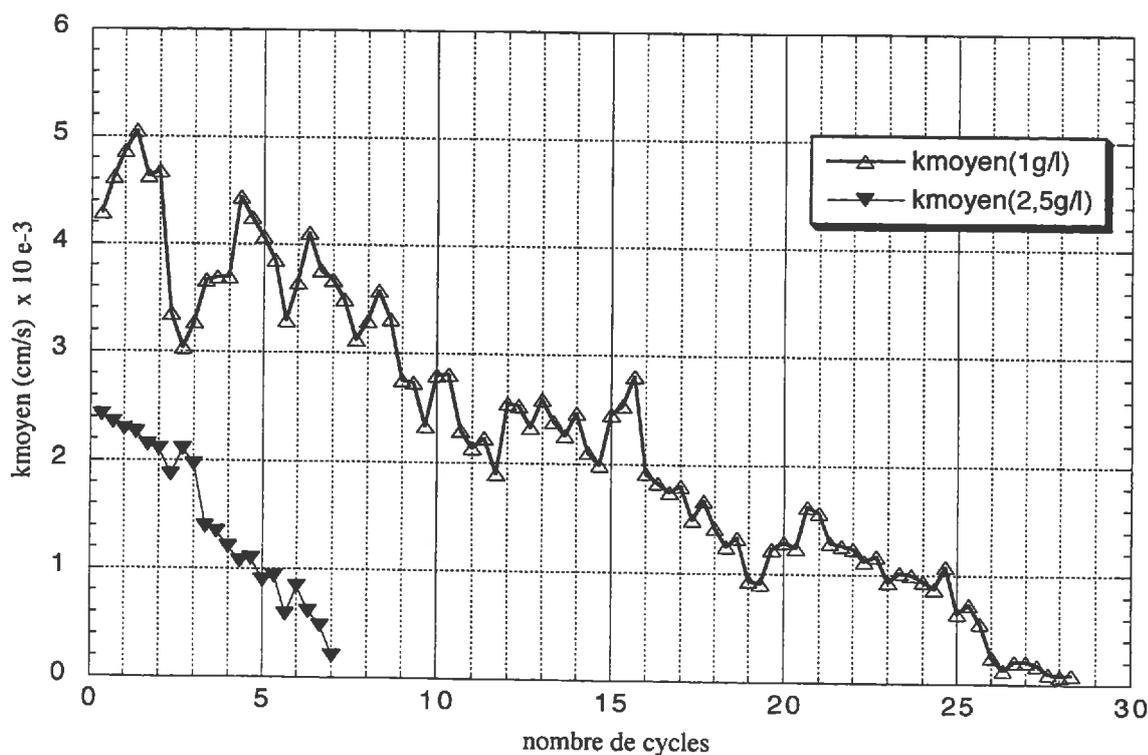


FIG. 3.21 - Variation de la perméabilité au cours des cycles d'imbibitions

La rétention de particules colloïdales qui après séchage occupent la porosité du milieu poreux est 2,5 fois plus grande dans le cas de la concentration de 2,5 g/l que dans le cas de la concentration de 1 g/l. C'est bien que la perméabilité chute plus rapidement pour les fortes concentrations que pour les faibles puisque celle-ci dépend de la porosité.

On remarque, par ailleurs, que la perméabilité initiale de l'empilement poreux n'a pas la même valeur pour les deux concentrations. Cette différence est due à la variation de la viscosité de la suspension de bentonite qui elle même dépend de la concentration en particules argileuses dans le liquide.

Le rapport entre les perméabilités initiales de l'échantillon traversé respectivement par les suspensions à 1 g/l et 2,5 g/l, est environ égal à 1,7. Les mesures de viscosité de la suspension en fonction de la concentration par le dispositif de Poisseuille (fig. 3.22), donne un rapport de viscosité légèrement plus faible égal à  $1,4 \pm 0,09 \text{ cm}^2 \cdot \text{s}$ .

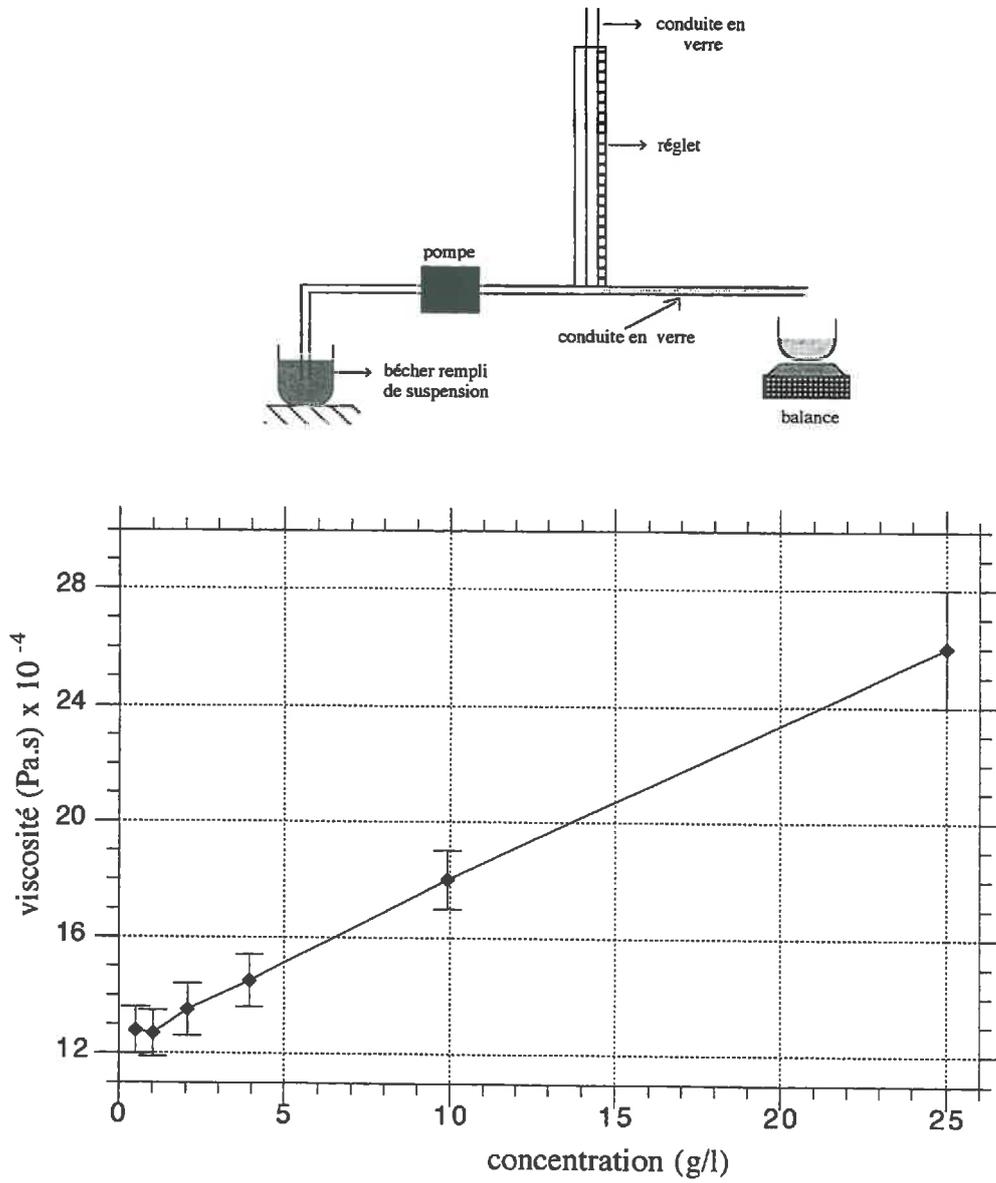


FIG. 3.22 - Variation de la viscosité d'une suspension de bentonite sodique en fonction de la concentration

### 3.7 Conclusions

Dans ce chapitre, nous avons examiné expérimentalement l'influence des cycles d'imbibition-séchage d'une suspension colloïdale faiblement concentrée de bentonite sodique sur les caractéristiques hydrauliques d'un milieu poreux modèle initialement pulvérulent.

Un résultat important de ce chapitre est le colmatage du milieu poreux sous l'effet des cycles imbibition-séchage de la suspension de bentonite. Ce colmatage se manifeste au niveau macroscopique par l'arrêt de l'écoulement. Au niveau microscopique, nous verrons dans les prochains chapitres qu'ils se forment des liens (ponts et ciments argileux) entre les billes contribuant à boucher les passages du liquide. Ce colmatage est d'autant plus important que la concentration en colloïdes est forte (environ six cycles pour une concentration de 2,5 g/l et vingt six cycles pour la suspension à 1g/l).

La méthode de dosage par découpage de l'échantillon nous a permis de connaître le comportement des colloïdes argileux dans le milieu poreux à l'imbibition et au séchage.

Ainsi, dans les conditions expérimentales de cette étude, nous avons montré que la distribution des colloïdes de bentonite est uniforme dans l'échantillon aux états humides. Au cours du séchage, les particules argileuses migrent vers la surface libre de l'échantillon et s'y concentrent.

Cette migration n'est pas due aux déplacement des particules vers l'interface triple (air-solide-liquide); les colloïdes suivent en fait le mouvement global de l'eau qui se fait inversement au sens de pénétration de l'air du bas vers le haut de l'échantillon (cf. 3.2.5).

La rétention au cours de l'écoulement de la suspension est pratiquement nulle. En effet, les différents dosages à l'état humide montrent qu'il n'existe pas d'interaction entre les grains du milieu et les particules colloïdales. Ainsi, la quantité d'argile retenue après séchage de l'échantillon correspond à la masse d'argile baignant dans le liquide interstitiel occupant la porosité.

La répétition de plusieurs cycles d'imbibition-séchage nous a conduit à des échantillons hétérogènes présentant une concentration importante en colloïdes en surface de séchage. Ceci a pour effet de consolider cette partie de l'échantillon grâce aux ponts et aux "ciments argileux" qui se sont créés entre les grains (voir chapitre 4). Cette partie est appelée "croûte de billes". Le reste du massif s'enrichit en colloïdes de façon linéaire (fig. 3.20) mais reste néanmoins dans un état pulvérulent. La caractérisation mécanique de la croûte de billes sera présen-

tée au chapitre 5.

La comparaison du comportement des suspensions à différentes concentrations (0,1 g/l, 1 g/l, 2,5 g/l et 10 g/l) montre que les phénomènes de distribution uniforme à l'état humide et de migration vers l'interface air-solide au cours du séchage sont identiques sauf pour la concentration de 0,1 g/l. Nous avons aussi noté qu'il existe une proportionnalité des distributions aux états humide et sec des concentrations 1 g/l, 2,5 g/l et 10 g/l.



## Chapitre 4

# Morphologie des dépôts

### 4.1 Introduction

L'évolution de la perméabilité et de l'état de cohésion de l'échantillon au niveau macroscopique résulte des modifications de la porosité au niveau microscopique, où les mécanismes de rétention au cours du séchage donnent naissance à des dépôts.

Après chaque cycle d'imbibition-séchage, tandis que la perméabilité moyenne du milieu poreux chute progressivement, on remarque l'apparition d'une zone consolidée en surface de séchage. Cette zone a une épaisseur très faible aux premiers cycles et elle s'étale ensuite sur quelques millimètres (3-5 mm) à partir de la surface. Dans la masse de l'échantillon, bien que la concentration en argile augmente, la cohésion du massif reste très faible. Ainsi, on obtient des échantillons hétérogènes se composant de deux parties (fig. 4.1) :

a - une partie consolidée en surface de séchage (interface d'échange). On distingue la face externe à l'interface solide-air et la face interne qui constitue la limite entre la partie concentrée et le reste de la masse,

b - une partie pulvérulente dans la masse de l'échantillon.

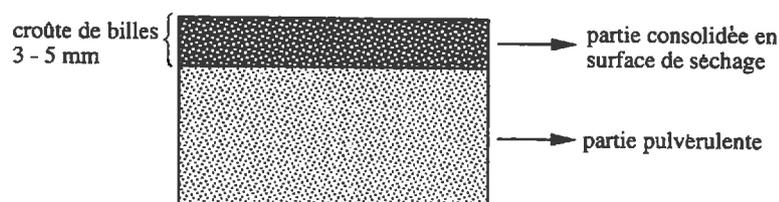


FIG. 4.1 - Formation d'une partie consolidée après plusieurs cycles d'imbibition-séchage

La différence de cohésion entre les deux parties est due essentiellement à la différence dans les formes de dépôts qui eux-mêmes dépendent de la concentration

en argile dans chacune des zones.

Nous avons, dans un premier temps, observé au microscope à balayage électronique et au microscope environnemental les morphologies de dépôts associées à chacune des parties considérées. L'observation de voiles circulaires assurant les liaisons entre les grains (au lieu d'amas ponctuels aux points de contacts entre les billes), nous a incité à aller plus loin dans la compréhension des phénomènes gérant le processus de séchage dans l'empilement poreux, en réalisant des expériences de séchage dans des dièdres.

## 4.2 Revue des précédents travaux

La compréhension des mécanismes d'agrégation des particules à l'échelle du pore est fondamentale puisque la modification de l'écoulement résulte de cette agrégation. La majorité des expériences de visualisation donnent essentiellement des informations de nature qualitative mais pas quantitative de ces dépôts. Cependant, ces informations sont en général à la base des raisonnements dans les théories prédictives du comportement du processus de la filtration.

C'est Stein en 1940 [105], qui le premier a étudié les morphologies des dépôts. Une revue détaillée des différents travaux développés jusqu'en 1980 (Cleasby et Baumann (1962), Maroudas et Einsenlam (1965), Ison et Ives (1965), Ison et Ives (1969)) est développée dans l'article de Payatakes et al. [86]. Dans l'ensemble de ces travaux, il semble que les difficultés sont liées aussi bien au choix des particules qu'à la présentation simplifiée d'un milieu poreux réel. Le choix des particules doit prendre en compte la déformabilité ou non de celles-ci. En effet, des différences significatives de morphologie sont constatées dans l'un ou l'autre cas. On remarque par exemple que les particules déformables facilitent la réorganisation des dépôts sous l'action des forces de cisaillement hydrodynamiques [105].

En ce qui concerne le milieu poreux, il est plus intéressant de travailler avec un modèle permettant l'emploi d'une technique d'observation non-destructive.

Différentes méthodes d'étude des localisations et des formations de dépôts ont été envisagées par les chercheurs. Payatakes [86], Gohr [43], utilisent microscopes et cameras vidéo pour enregistrer l'évolution des dépôts dans des modèles transparents. D'autres auteurs [64] suivent l'évolution de la porosité d'un empilement en trois dimensions grâce à l'imagerie par résonance magnétique, tandis que Ghidaglia se base sur l'ajustement des indices de réfraction entre le filtre et le liquide d'écoulement. On trouve aussi des expériences de dispersion de traceur radioactif [87] ou de marquage radioactif de particules colloïdales [24].

Les observations de l'évolution des dépôts au cours d'écoulements de suspensions témoignent de la variété des formes de dépôt et d'accumulation des particules dans la porosité des milieux poreux. Cette variété dépend à la fois de la géométrie du modèle, des particules et des caractéristiques de l'écoulement

(chapitre 2). Néanmoins, les scénarios des différentes rétentions sont relativement semblables : en général, on constate d'abord une rétention de particules sur la périphérie des grains, puis une accumulation à l'intérieur des pores. Ces formations dans la porosité obturent les passages entre les grains en les reliant entre eux par des ponts.

Goldenberg et al. [45] schématisent (fig. 4.2), à partir des observations expérimentales, les différentes séquences de rétention de l'argile dans le milieu modèle. Ces constatations sont prises en compte pour l'élaboration d'un modèle numérique de rétention. Cette évolution des dépôts [45] est comparable aux évolutions de dépôts observées par Gohr et al. [43] dans le cas d'un écoulement dans un modèle en résine incliné de  $45^\circ$  par rapport au sens de l'écoulement où on remarque, en plus, une accumulation sur les pointes des grains. Payatakes et al. [86] observent aussi la formation de pontages entre des grains de forme circulaire au cours de l'écoulement (fig. 4.3). Néanmoins, il n'existe pas d'accumulation de particules de latex sur les parties inférieures des grains.

Par ailleurs, Goldenberg et al. [44] se sont également intéressés à l'étude du comportement des suspensions d'argiles après séchage dans un milieu poreux. Dans ce cas, ils constatent que pendant la phase pendulaire (discontinuité de la phase liquide) du séchage, les particules d'argile se concentrent à l'interface gaz-liquide. Le séchage terminé, l'argile forme des structures compactes ou ayant des micro-fissures aux centres des canaux dans la direction perpendiculaire à l'écoulement.

### 4.3 Forme microscopique des dépôts après séchage de la suspension dans l'empilement

Les observations des photographies d'échantillons de billes obtenues par le microscope électronique à balayage (M.E.B du type PHILIPS XL 30, équipé d'une sonde à rayon x EDAX pour l'analyse chimique des matériaux) et par le microscope environnemental (Eletro Scan E3, voir annexe F) donnent essentiellement deux types de morphologies de dépôts.

Dans le cas du M.E.B, la métallisation des échantillons est effectuée à l'or. En revanche, avec le microscope environnemental, les échantillons ne subissent aucun traitement préalable.

#### 4.3.1 Observation des croûtes de billes

Les échantillons, obtenus après application de plusieurs cycles d'imbibition-séchage, sont hétérogènes. Ils se composent de deux parties qui se distinguent chacune à l'oeil nu par sa coloration (fig. 4.1) : la partie supérieure consolidée se caractérise par sa couleur de plus en plus jaune due à la concentration en argile de plus en plus importante au cours des cycles imbibition-séchage. La partie

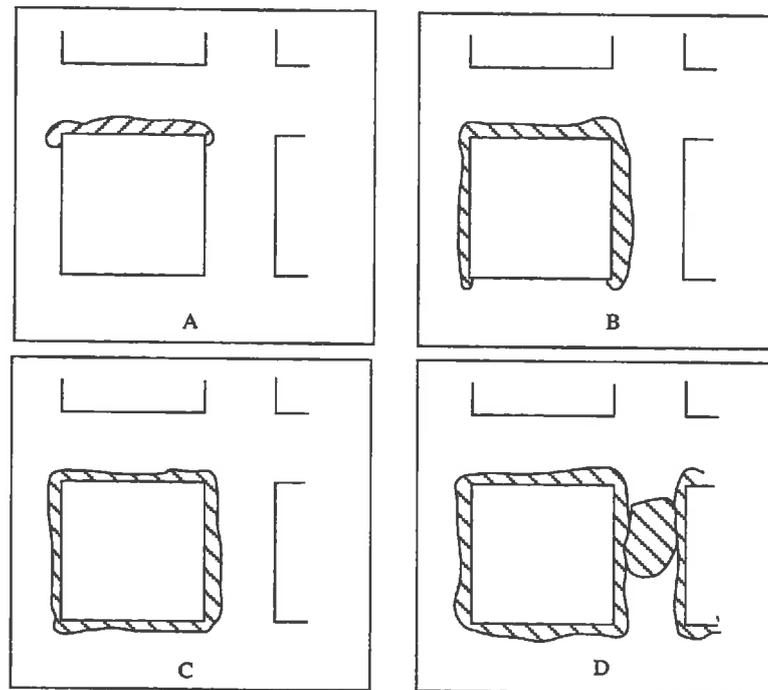


FIG. 4.2 - Accumulation des particules sur les cotés des grains (A), (B), (C), obturation du canal par un dépôt reliant les grains (D), (Goldenberg [45])

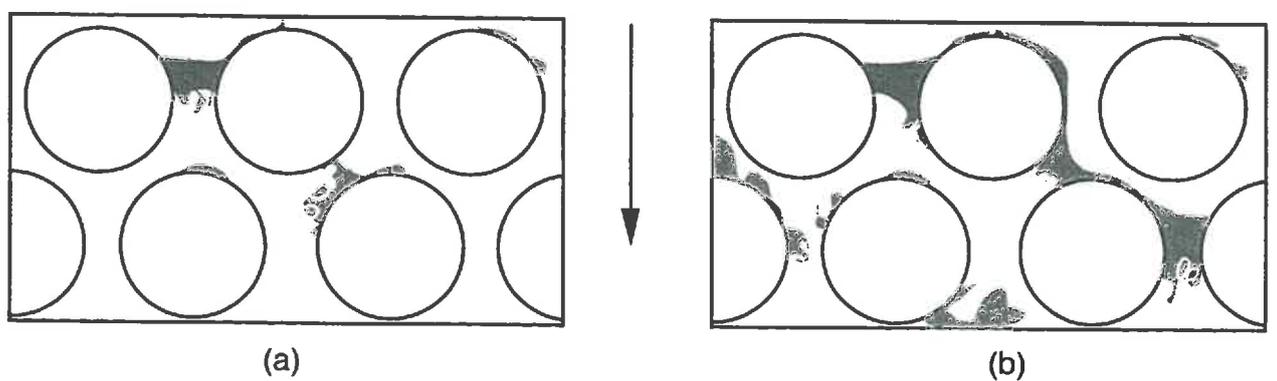


FIG. 4.3 - Evolution de la rétention dans les expériences de Payatakes [86]

inférieure de couleur blanche est pratiquement inchangée après plusieurs réimbitions et séchages.

De même, la partie consolidée possède deux faces : la face externe (interface solide-air) de couleur plus foncée que le reste de la couche (les billes de surface sont entièrement recouvertes d'une couche d'argile, voir figure 4.5) et la face interne à la limite de la coloration de cette partie.

Les observations au microscope consistent à étudier les formes de dépôts dans chacune de ces faces.

Les résultats des différents dosages de l'argile colloïdale montrent que la surface de séchage contient une concentration plus importante en argile que le reste de l'échantillon. De plus, nous avons constaté que la combinaison du "ciment argileux" et des ponts argileux contribue à la formation d'une couche consolidée (fig. 4.4).

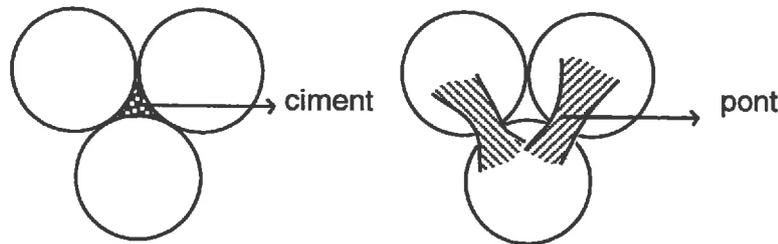


FIG. 4.4 - Schématisation des formes de dépôts : (a) "ciment argileux", (b) "pont argileux"

Une autre conséquence directe de ces formations est la chute de la perméabilité. Les dépôts argileux occupent la porosité du milieu et obturent les zones de passage du liquide, augmentant ainsi la résistance du milieu à l'écoulement de la suspension au cours de la réimbition.

### Ciment argileux en surface de séchage

Le "ciment argileux" se forme particulièrement à l'interface solide-air de l'échantillon. Ce type de formation est le résultat de la première phase de séchage. Nous avons vu, au chapitre 3, que les particules d'argile se déplacent vers la surface supérieure grâce au mouvement de l'eau en phase continue. Arrivée à la surface d'échange liquide-vapeur (la surface de séchage) l'eau s'évapore en laissant les colloïdes se déposer dans les pores de surface.

Ce "ciment" qui, en réalité au tout premier cycle, n'est qu'un "voile fin" perpendiculaire à la direction de l'évaporation (fig. 4.5, 4.6) se transforme en amas argileux dans la porosité (fig. 4.7) avec la répétition des cycles imbibition-séchage. Au cours de chaque cycle de séchage, l'argile migre vers la surface et forme une juxtaposition de voiles qui à leur tour vont former le ciment. On constate que ce ciment a la forme d'un amas compact occupant presque entièrement les pores de

surface de l'échantillon et il contient des fentes de retrait qui sont dues au séchage (fig. 4.6).

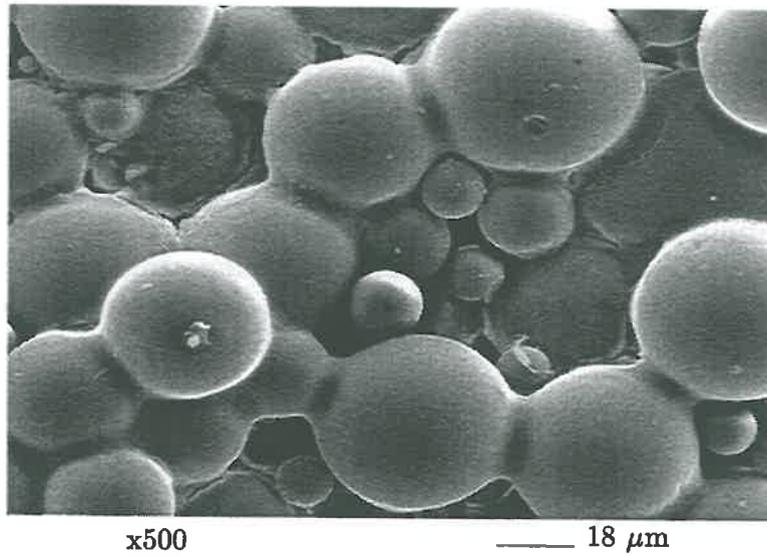


FIG. 4.5 - *Billes recouvertes d'argile et reliées par des ponts argileux au premier cycle de séchage*

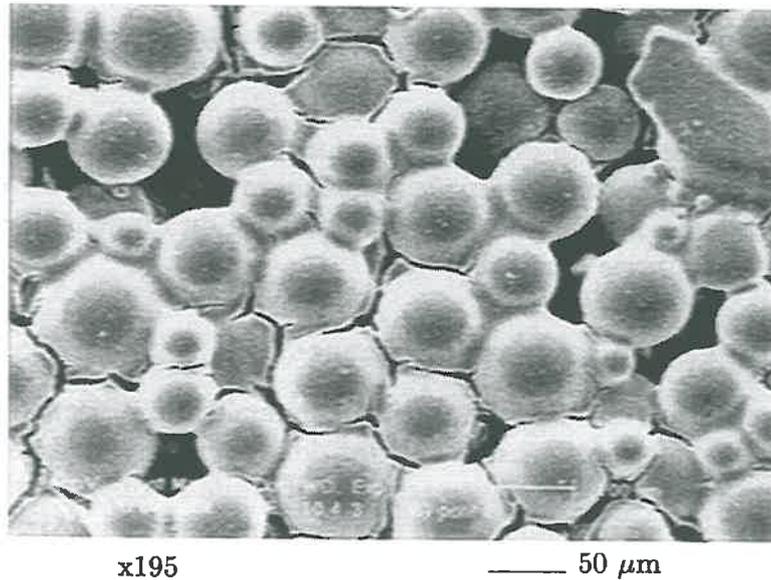


FIG. 4.6 - *Ciment argileux présentant des fentes de retrait dues au séchage au second cycle*

Le ciment argileux n'est pas le seul à assurer les liens dans cette couche. Il existe aussi des ponts qui relient les billes entre elles. On devine à gauche de la figure 4.7, le mouvement de rétrécissement d'un ménisque qui à la fin du séchage forme un pont.

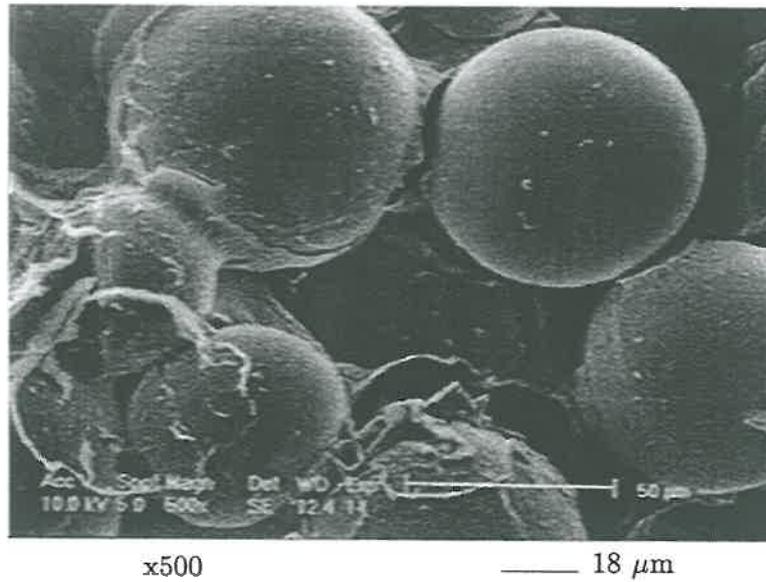


FIG. 4.7 - Le pore au centre de la photographie est occupé par un amas d'argile, tandis que les billes sont reliées par des ponts. Dans le quart inférieur gauche de la photographie, on remarque un voile circulaire, trace d'une ancienne bille décollée.

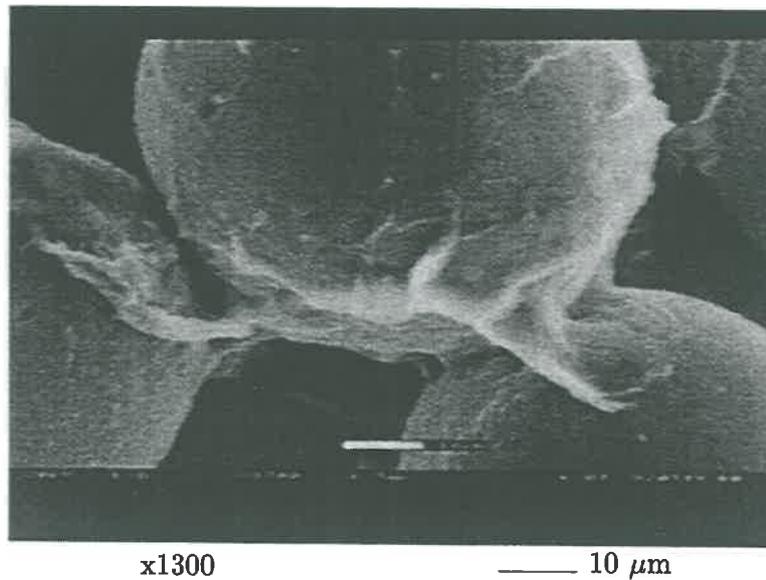


FIG. 4.8 - Assemblage de billes recouvertes d'argile par des ponts en surface après colmatage

### Ponts et voiles d'argile dans la surface interne

Si on retourne la croûte de billes, on remarque qu'il ne subsiste plus de dépôts compacts dans la porosité (fig. 4.9) : les liens sont essentiellement des ponts assurant la liaison entre les billes. On observe aussi des formes de voiles continues sur la surface des billes (fig. 4.10). Ce type de formation ne se limite pas uniquement à cette couche, mais on le retrouve aussi dans toute la masse de l'échantillon comme nous le verrons dans le paragraphe suivant.

Cependant, ces liens dans la surface interne semblent plus fréquents (fig. 4.10) et plus solides (nous n'avons pas trouvé de moyen de mesure) que ceux dans la masse, car ces premiers assurent de manière suffisante la cohésion de la couche. Par contre, dans la masse, la cohésion reste très faible malgré l'augmentation de la concentration en colloïdes.

### 4.3.2 Ponts et voiles d'argile dans la masse

Ce type de formation est assez courant dans la masse de l'échantillon. Tandis que les ponts relient plusieurs particules entre elles, les voiles d'argile sont des structures très fines continues et fragiles qui se situent sur la surface des billes. Ces formations sont le résultat de la seconde phase de séchage en phase discontinue (cf. chapitre 3). Cet état est généré par l'apparition de forces capillaires importantes au sein de l'échantillon au cours du séchage, ce qui favorise la formation de ménisques de suspension entre les billes. Au cours du séchage, ces ménisques reliant localement les billes, laissent en séchant ces formes de ponts et de voiles (fig. 4.9, 4.10).

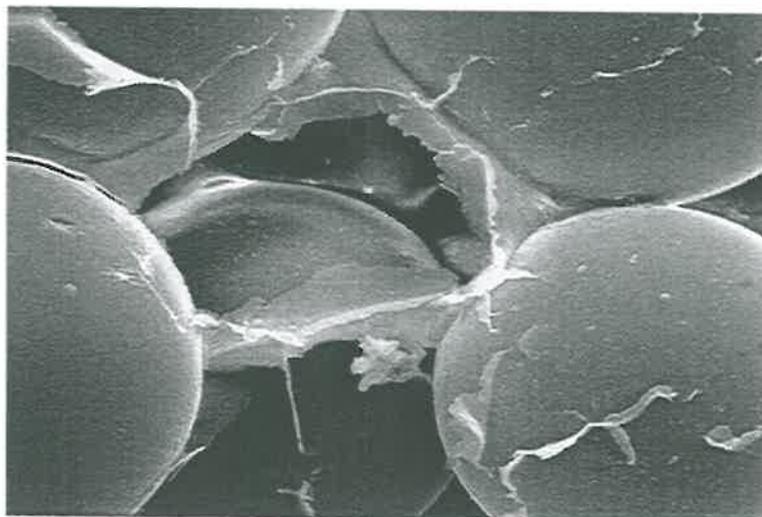
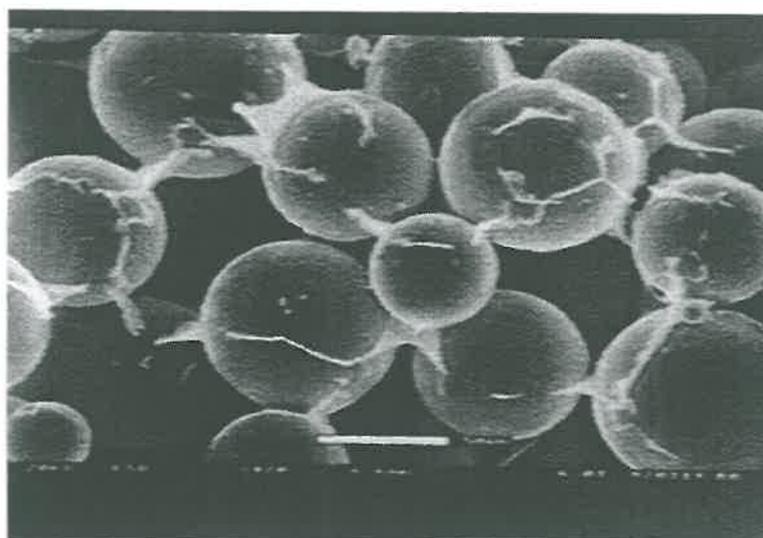


FIG. 4.9 - Voile d'argile reliant des billes entre elles, et d'autres plus fins sur la surface



x420

— 30  $\mu\text{m}$

FIG. 4.10 - *Continuité des voiles d'argile*

Ces structures n'ont pas une influence aussi néfaste sur la chute de la perméabilité que les ciments de surface, car elles ne se situent pas forcément dans les zones de passage du fluide.

#### 4.4 Etude microscopique du séchage de la suspension dans l'empilement poreux

Au niveau macroscopique, la perte de poids au cours de l'évaporation varie linéairement avec le temps (fig. 2.13). Ce comportement connu [78] montre que les forces capillaires générées sont suffisamment importantes pour empêcher la formation d'une surface libre à l'intérieur de l'échantillon. Au cours du séchage, l'eau dans l'échantillon est remplacée progressivement par la phase gazeuse, ce qui donnera lieu au niveau microscopique à l'apparition des ménisques de suspension entre les billes.

Au fur et à mesure que le séchage se poursuit, la concentration en colloïdes augmente au sein de chaque ménisque. On s'attend naturellement à ce qu'un front de séchage, plus concentré que le reste de la suspension, se forme près de la surface libre du ménisque et progresse vers le point de contact entre les grains. Ainsi, il ne subsisterait qu'un lien ponctuel d'argile sèche entre les points de contact des billes (fig. 4.11, a). Or, les observations au microscope révèlent des couronnes d'argile ou leurs empreintes (fig. 4.11, b), d'un diamètre variable qui peut être de l'ordre du rayon des billes (fig. 4.12).

Dans le but de comprendre les processus géant le phénomène du séchage de

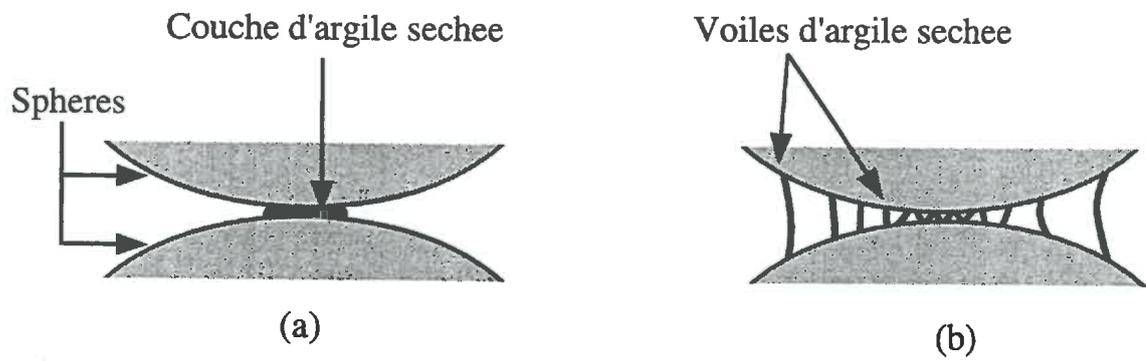


FIG. 4.11 - *Comportement du ménisque au séchage*

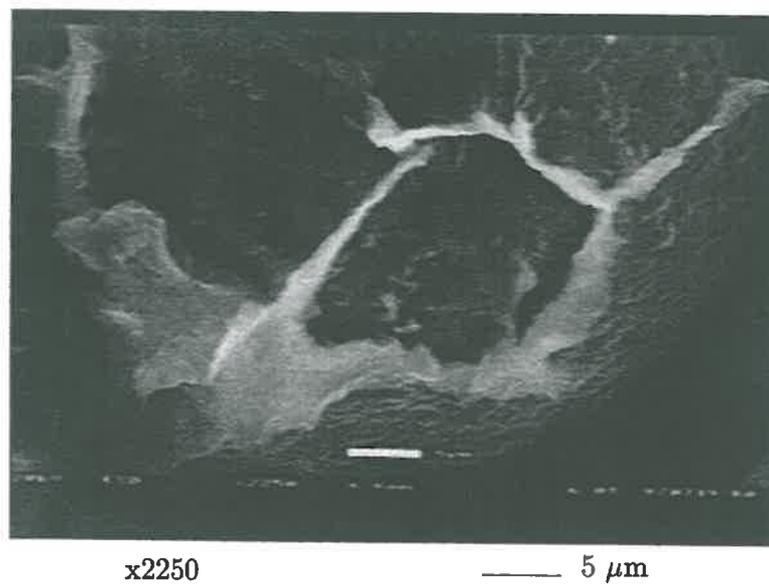


FIG. 4.12 - *Couronne d'argile au point de contact entre les billes en surface de séchage*

la suspension dans un pore, entre deux grains, nous avons réalisé des expériences de séchage dans des systèmes plus simples (empilement d'une couche de billes macroscopiques dans une boîte de Pétri, et dièdre). Nous allons décrire, dans les paragraphes suivants, les principes des essais et les résultats des observations.

## 4.5 Séchage d'une suspension colloïdale dans un système sphères-plan

Cette expérience consiste à fabriquer un empilement d'une couche de billes de verre de diamètre 5 mm dans une boîte de Pétri, puis à le couvrir d'une suspension de bentonite à 10 g/l, et enfin à sécher l'ensemble dans une étuve chauffée à 60°C.

Les observations à l'oeil nu des échantillons de billes séchées (fig. 4.13), nous permettent d'établir les remarques suivantes :

- A - la partie supérieure des billes situées à l'interface air-solide est recouverte d'une couche mince d'argile ;
- B - dans les constriction entre les grains, on distingue (fig. 4.13) :
  - B.1 - des zones de faible porosité (petits pores) (fig. 4.14, b) : on observe la formation de voiles perpendiculaires à la direction de l'évaporation. D'une part ces voiles relient les billes entre elles, et d'autre part ils contiennent des fractures et des ouvertures au centre des constriction ;
  - B.2 - des zones de porosité importante (gros pores) (fig. 4.14, a) où aucune formation n'a été observée. Comme nous n'avons pas décelé de traces ou de résidus de structure dans le fond de la boîte, on suppose que ces zones sont des lieux privilégiés de passage de l'air ;
- C - à la base de la boîte (fig. 4.13), si on détache quelques billes, on remarque des traces symétriques de voiles en formes de couronnes qui se sont formées aux points de contact entre les billes et le plan (fig. 4.15) ;
- D - la partie des billes, comprise entre la limite de la surface recouverte d'argile et les points de contact billes-plan, est à peu près égale au rayon d'une bille, et semble en général moins couverte d'argile que la partie supérieure.

Ces expériences de séchage à l'échelle macroscopique confirment les résultats obtenus après séchage de la suspension d'argile dans un empilement de billes de taille microscopique, à savoir :

- la migration et la concentration de l'argile en surface de séchage ;
- la formation d'un voile mince perpendiculaire à la direction de l'évaporation à l'interface air-solide de l'empilement ;
- la formation de voiles concentriques aux points de contact entre la bille et le plan.

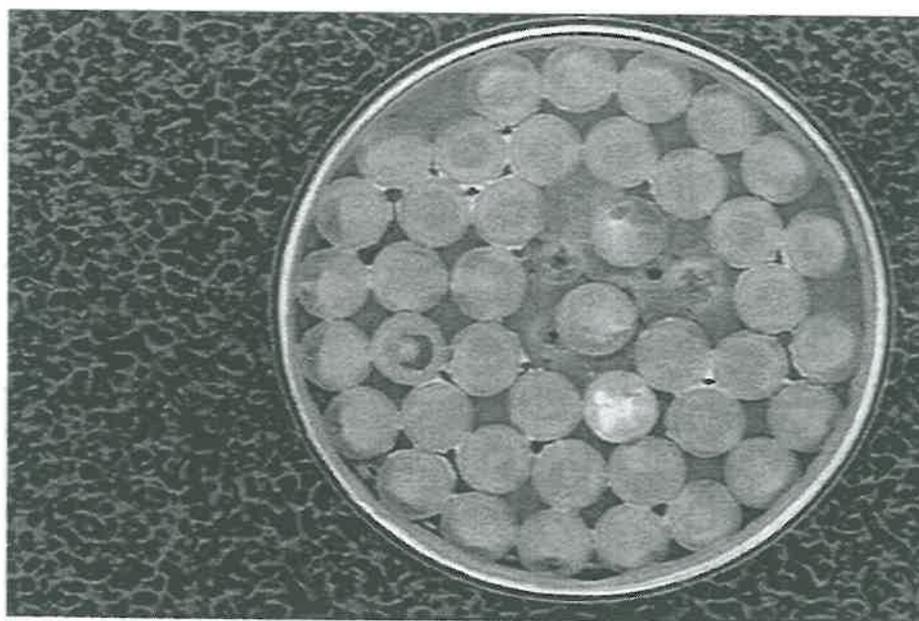
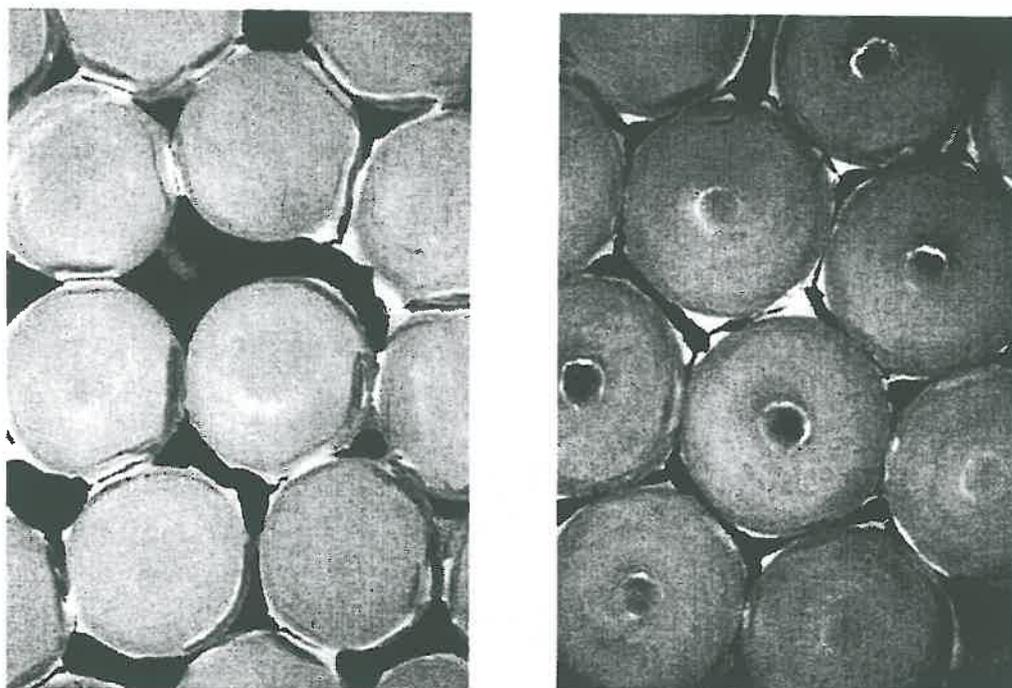


FIG. 4.13 - *Ponts entre les billes et traces de voiles aux points de contact plan-sphère (5 mm) après séchage de la suspension*

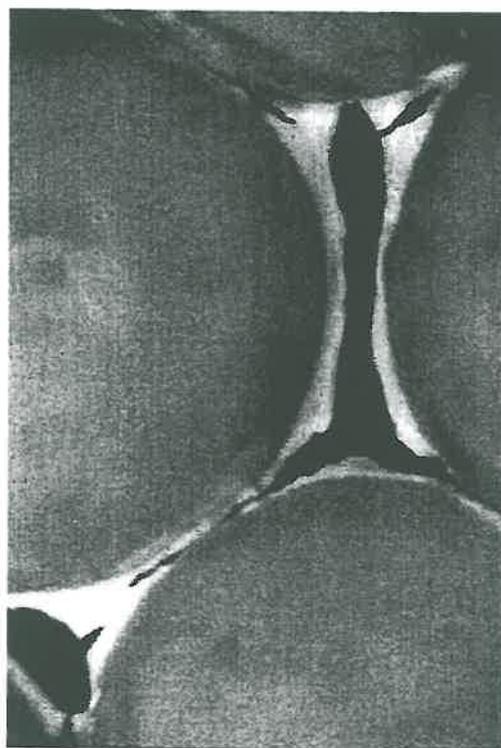
A partir des observations ci-dessus, nous avons tenté de schématiser le processus de séchage susceptible de donner lieu à ce type de formations de dépôts dans l'empilement monocouche (fig. 4.16) : voiles plans entre les grains à la mi-hauteur d'une bille perpendiculaires à la direction de l'évaporation (fig. 4.14) et voiles circulaires aux points de contact du support et de la bille (fig. 4.15).

Nous avons montré au chapitre 3 que les pores de gros diamètres d'un empilement aléatoire d'une couche de billes macroscopiques ont tendance à sécher plus rapidement que les pores de faibles diamètres. Pour obtenir ces formations de voiles aux différents points de contact, il est vraisemblable que la phase air, une fois qu'elle atteint le fond du support dans un gros pore, contourne la bille pour former des ménisques de suspension entre les grains dans les zones de faible porosité et des couronnes de suspension au niveau des contacts grains-plan. En séchant, les ménisques rétrécissent et laissent cette forme de voile fin dans la direction perpendiculaire à l'écoulement. Ces dépôts sont très ressemblants aux dépôts dans l'échantillon poreux au niveau de l'interface air-solide. En ce qui concerne les couronnes de suspension, leur séchage conduit à la formation de voiles concentriques. Ceci est aussi comparable aux formes de voiles observées dans la masse de l'empilement de billes micrométriques (nous verrons dans le paragraphe qui suit que ces voiles se forment aussi dans les dièdres).

La localisation des voiles de suspension dans l'empilement nous conduit à penser que tandis que les voiles plans participent à la réduction de la perméabilité, les voiles circulaires jouent un rôle dans la consolidation de l'empilement.



(a)



(b)

FIG. 4.14 - Les différentes formations dans la porosité d'un empilement de billes de 5 mm après séchage de la suspension de bentonite, (a) voiles d'argile inexistant dans les zones de forte porosité, (b) voiles fracturés dans une zone de faible porosité

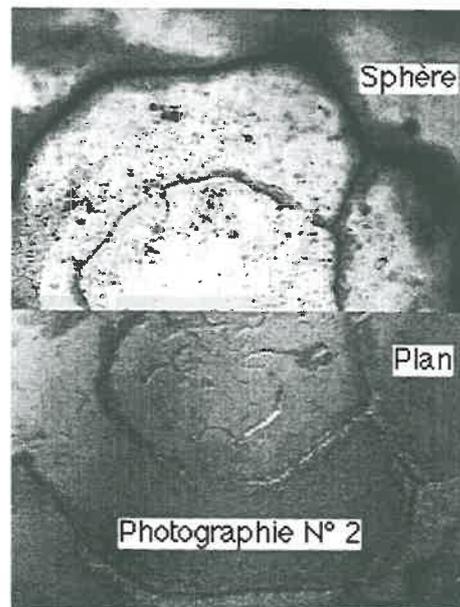


FIG. 4.15 - *Détail du point de contact sphère-plan: symétrie des traces*

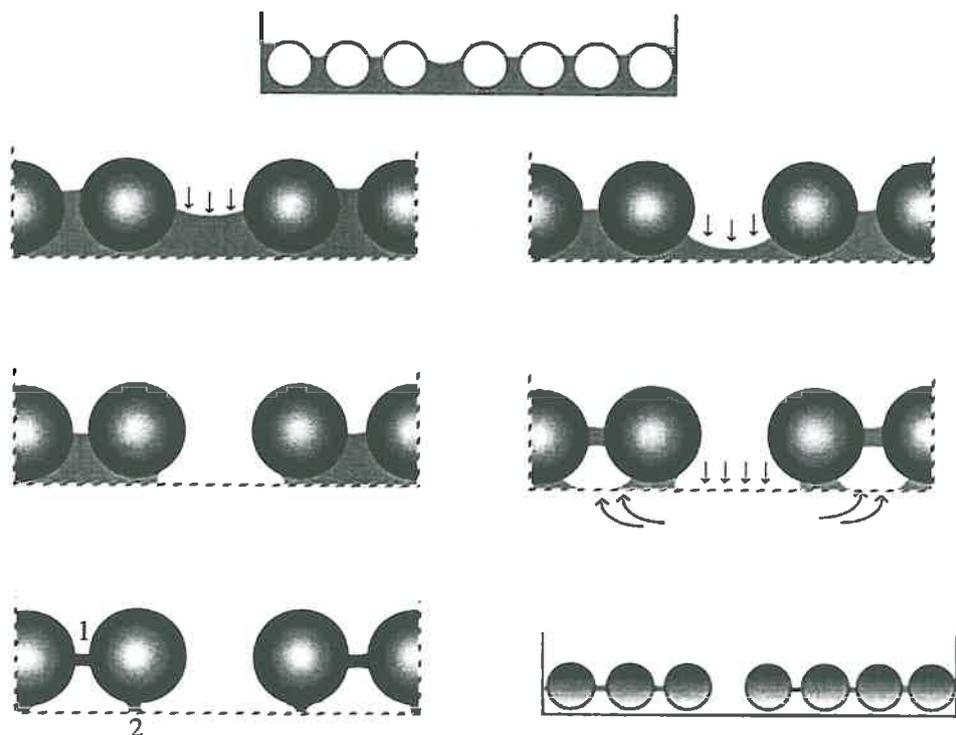


FIG. 4.16 - *Schématisation des séquences de séchage dans l'empilement*

## 4.6 Séchage de la suspension colloïdale de bentonite dans un dièdre

La répétition du phénomène de formation de voiles entre solides de différentes géométries aux différentes échelles, nous a poussé à essayer de mieux comprendre les processus générant ces formations au séchage. C'est pourquoi, nous avons décidé d'étudier un système simple constitué de deux lames de verre formant un dièdre à faible angle ( $\phi = 1,33^\circ$ ). Ce dispositif a l'avantage de présenter une géométrie simple et facilite l'observation du phénomène du séchage au cours du temps (fig. 4.18).

### 4.6.1 Préparation du système

Le système utilisé est simple, il se compose essentiellement d'un assemblage de lames de microscope, comme décrit ci-après (fig. 4.17) :

- on colle en forme de T deux lames de microscope,
- on injecte, à l'aide d'une pipette, environ 0,4 ml de suspension,
- on rabat ensuite une troisième lame en faisant attention à ne pas emprisonner de bulles d'air.

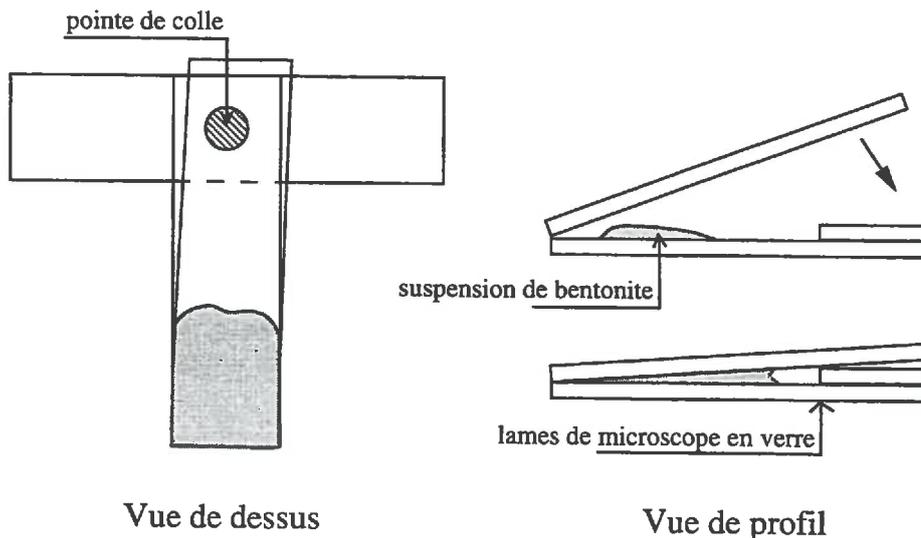


FIG. 4.17 - Préparation d'un dièdre

Dans cette géométrie, la surface d'évaporation est approximativement (en faisant abstraction de la courbure de la surface libre perpendiculaire au dièdre) constituée d'une partie rectangulaire "le front" et de deux parties triangulaires "surfaces latérales". Cependant, comme pour les ménisques compris entre deux

sphères, l'évaporation induit une augmentation de la fraction solide et, principalement, un "déplacement" de la suspension vers le point de contact des deux plans.

Les différents déplacements, à intervalle de temps régulier (30 minutes), sont photographiés grâce à une caméra CCD (fig. 4.18).

#### 4.6.2 Résultats des observations

Un suivi par caméra vidéo du processus d'évaporation à intervalle de temps régulier, montre qu'au début, le retrait du ménisque est régulier et que son profil est à peu près rectiligne (fig. 4.18). Puis ce profil commence à onduler. Ces irrégularités qui se propagent initialement dans la direction générale du retrait prennent ensuite des directions perpendiculaires. La pénétration de l'air isole ainsi des parties de la suspension qui s'immobilisent. Le retrait de la suspension se poursuit alors sur le front avant, dans la direction initiale, tandis que les parties restées en arrière forment des presqu'îles où l'eau continue à s'évaporer. Dans le front en mouvement le phénomène se poursuit ce qui laisse la série de voiles toujours interconnectée.

Après évaporation complète au bout d'une dizaine d'heures, on observe un réseau de membranes d'argile qui relie les deux lames de verre. La séparation de celles-ci révèle une parfaite symétrie des deux traces, là encore il s'agit de voiles d'argiles s'appuyant sur chaque paroi (fig. 4.19).

#### 4.6.3 Influence de la concentration

On notera que le phénomène décrit ci-dessus dépend de la concentration initiale d'argile (fig. 4.20). Lorsque celle-ci est faible les ondulations se produisent seulement lorsque le niveau de la surface libre est très près de la ligne de contact des plans. En revanche, pour de fortes concentrations initiales les ondulations se produisent très rapidement après le début du retrait. Lorsque la concentration dépasse une valeur critique (environ 1,7 %), l'instabilité semble se produire dès le début du retrait, sous la forme de lignes de fracture qui se propagent vers la ligne de contact des plaques.

### 4.7 Interprétation physique du processus de séchage

Au cours du séchage d'une suspension, la concentration en particules près de la surface libre (interface fluide-air) augmente à cause de l'évaporation du liquide dans cette zone. Dans le cas de la suspension de silice colloïdale, ceci a tendance à "rigidifier" le système près de l'interface et peut donner lieu à des fractures régulières [1, 85]. Les gels de polymères peuvent quant à eux se rétracter dans un

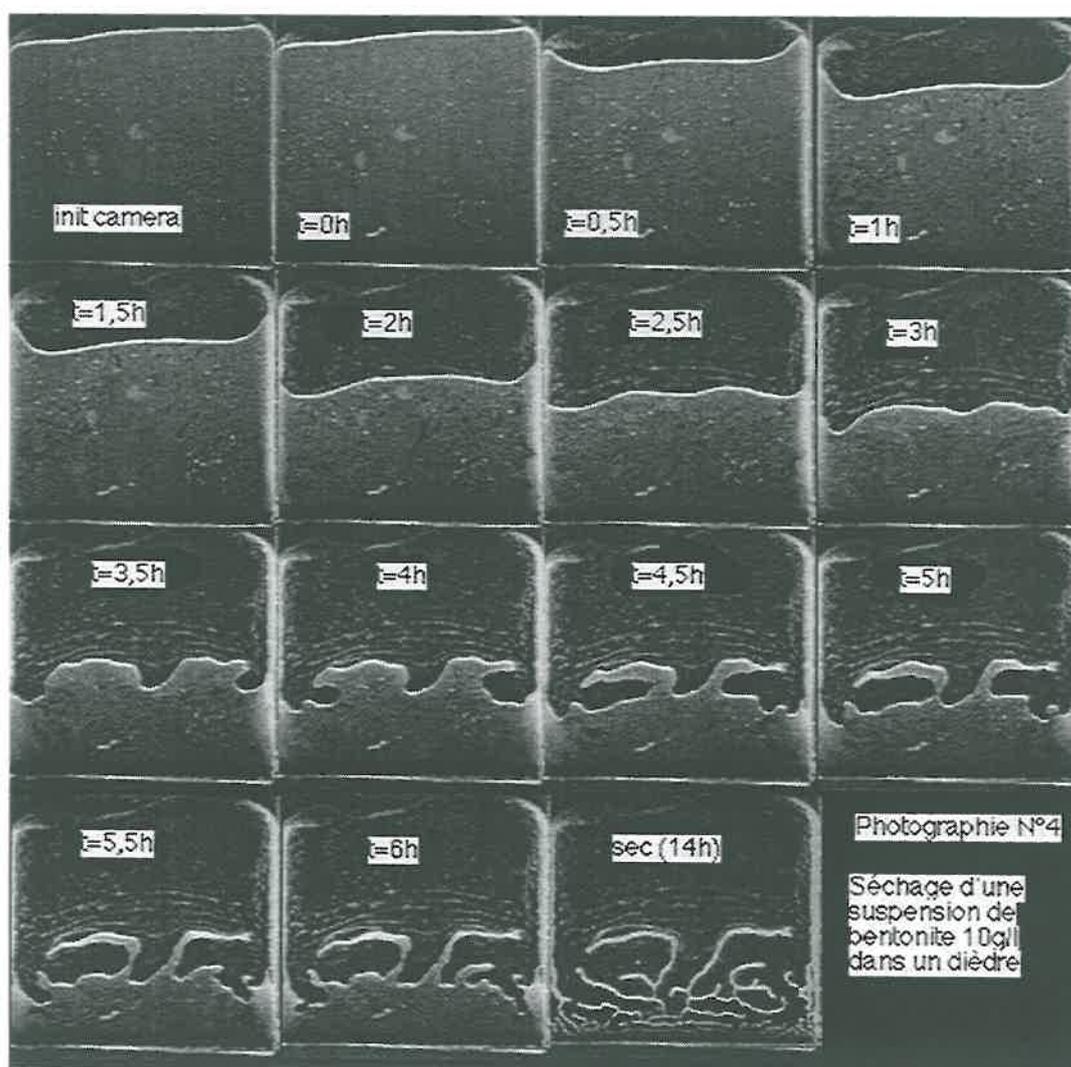


FIG. 4.18 - Evolution du front de séchage de la suspension au cours du temps

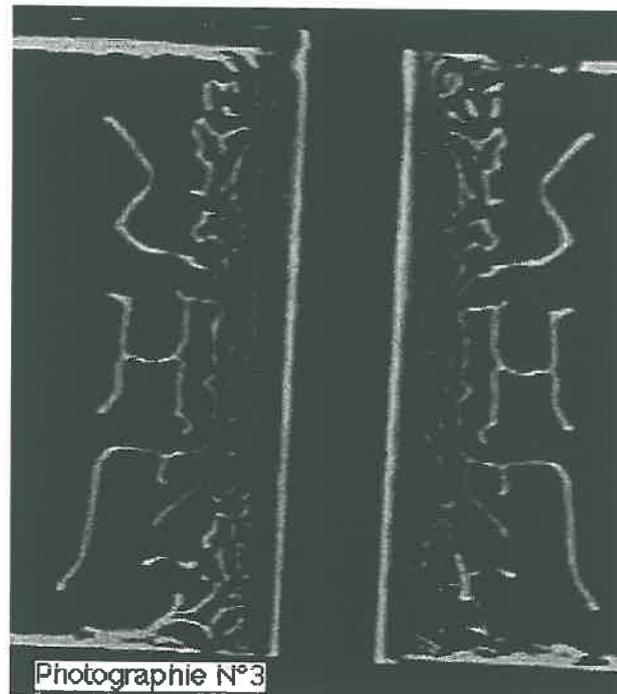
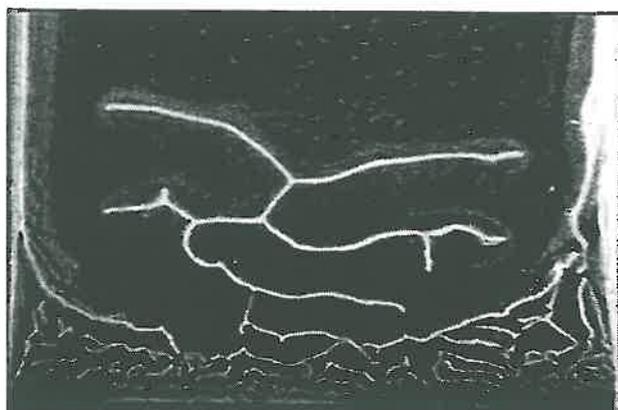
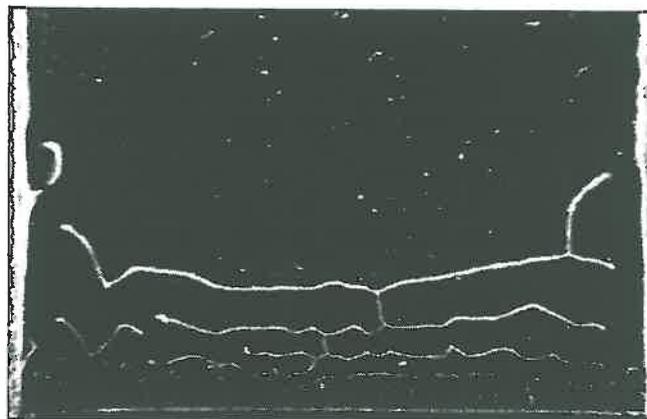


FIG. 4.19 - *Symétrie des figures après séparation des deux lames*

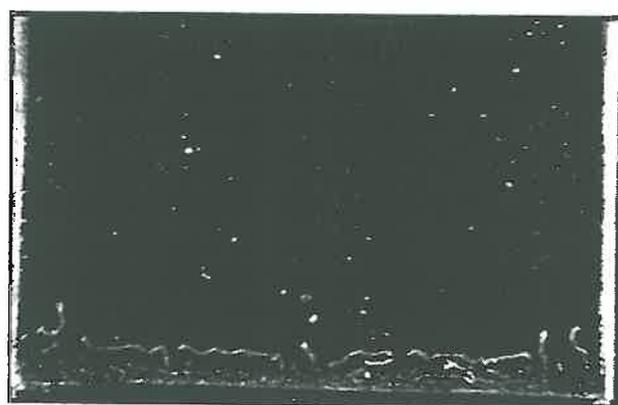
premier temps puis se fracturer [99]. Le séchage des pâtes d'argile donne lieu à des phénomènes analogues [68]. Dans la phase de contraction, il existe un gradient de concentration solide entre la surface d'évaporation et l'intérieur de l'échantillon. Ce gradient est d'autant plus marqué que le temps de séchage  $T_s$  est court par rapport au temps caractéristique  $T_e$  nécessaire au système pour rééquilibrer sa concentration. Pour certaines suspensions,  $T_e$  peut être simplement lié à la diffusion des particules solides par mouvement brownien. Pour des suspensions telles que des gels d'argile ou de polymères, les interactions fortes entre les particules sont telles qu'elles n'autorisent pas de véritables diffusions de particules solides à travers le système. En fait, lorsque la suspension est au repos d'un point de vue macroscopique, les particules sont essentiellement capables de se rapprocher ou de s'écarter progressivement les unes des autres s'il existe un gradient de concentration au sein de la suspension.  $T_e$  dépend des interactions entre particules, et donc du seuil de contrainte de la suspension, ainsi que des mouvements browniens des particules autour de leur position d'équilibre. D'un point de vue macroscopique, pour les gels de polymères et les pâtes d'argile, il a été suggéré que l'établissement d'un tel gradient résulte d'un équilibre entre le transfert d'eau, à travers les couches de matériau vers la surface libre, et les déformations du réseau de particules liées à la rétraction. Dans ce cadre, les deux paramètres essentiels sont donc la perméabilité du milieu et sa viscosité.



suspension à 25 g/l



suspension à 4 g/l



suspension à 1 g/l

FIG. 4.20 - *Influence de la concentration sur la formation des figures*

### 4.7.1 Séchage dans le dièdre

Le dièdre utilisé possède une géométrie particulière qui permet l'évaporation à la fois par le front de retrait et par les surfaces latérales.

Nous avons montré, à travers une autre expérience de séchage de suspension de bentonite dans le dièdre en ajoutant un film d'huile sur le front d'avancement [37], que l'évaporation par le front de retrait est négligeable et qu'il n'est donc pas nécessaire qu'un front d'accumulation de particules se forme près de l'interface air-liquide pour que le retrait soit instable.

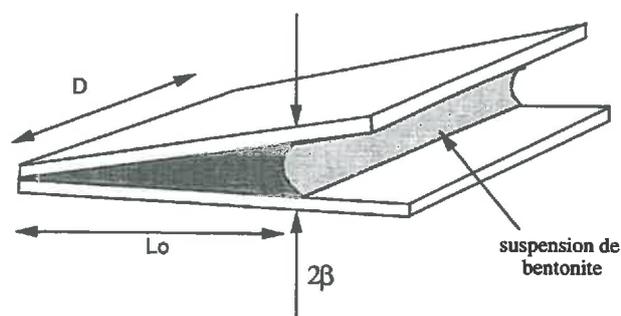


FIG. 4.21 - Dimensions du dièdre

Cependant, on peut se demander si un gradient de concentration quelconque est à l'origine de l'instabilité. Si tel est le cas, le gradient de concentration ne peut se former qu'à partir des surfaces latérales par lesquelles l'essentiel de l'évaporation se produit. Pour ce faire, Ph. Coussot [22] a mené une série d'expérience de séchage de suspension dans des dièdres de largeur  $D$  variable ( $D/L$  allant de 1 à 10, voir figure 4.21). On remarque pour une certaine largeur de dièdre, l'existence d'une zone centrale le long de laquelle l'instabilité se produit toujours de la même manière que dans le cas d'un séchage suffisamment lent à l'air ambiant, avec de l'air ou de l'huile à l'interface. Par conséquent, l'instabilité n'est pas liée à un gradient de concentration transversal résultant de l'évaporation par les surfaces latérales.

En partant du principe de l'absence de gradients de concentration transversaux et longitudinaux, les développements de Ph. Coussot [22] se basant sur l'hypothèse d'un séchage en masse (la concentration en particules augmente de manière à peu près homogène dans le dièdre au cours du séchage) et par une approche simplifiée de l'instabilité de Saffman-Taylor pour les fluides à seuil, donnent :

- la concentration instantanée de la suspension en fonction du retrait sous la forme suivante (annexe G):

$$\Phi = \Phi_0 \left( \frac{L_0}{L} \right)^2$$

$\Phi$  est la concentration instantanée;

$\Phi_0$  est la concentration initiale ;

$L_0$  est la distance initiale du front par rapport à l'arête du dièdre ;

$L$  est la distance d'apparition de l'instabilité ;

- la distance  $L$ , dans le cas du dièdre à angle faible, est donnée par :

$$\frac{L}{L_0} = \left( \frac{2 \Phi_0^3 L_0}{\sigma} \right)^{\frac{1}{5}}$$

où  $\sigma$  représente la tension superficielle du liquide.

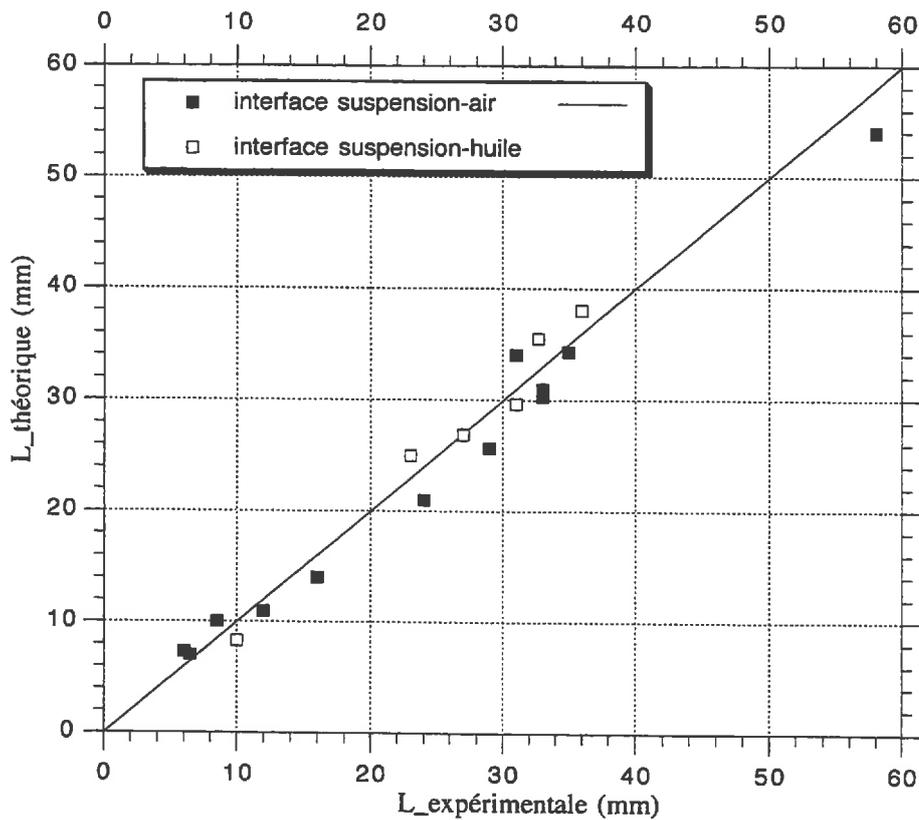


FIG. 4.22 - Distances théoriques et expérimentales d'apparition de l'instabilité lors de séchage de différents volumes de suspension de bentonite dans un dièdre de largeur  $D = 120$  mm

La figure 4.22 montre que la formule précédente, établie dans le cas d'un écoulement homogène d'un fluide poussé par de l'air, prédit correctement, sans aucun paramètre de calage, les résultats expérimentaux concernant la distance de l'apparition de l'instabilité lors du mouvement lié au retrait de la suspension du fait du séchage. Cependant, on remarque un meilleur accord entre les résultats théoriques et les résultats expérimentaux correspondant au cas où l'huile est placée

le long du front de retrait. En effet, en l'absence de l'huile, l'instabilité semble se produire un peu plus rapidement que ne le prévoit la théorie, ce qui pourrait signifier qu'un très léger gradient de concentration (ou une très faible épaisseur) se forme à partir du front de retrait.

#### 4.7.2 Séchage entre deux sphères

Compte tenu de la similitude des phénomènes observés dans le dièdre et dans l'empilement poreux, il est clair qu'un mécanisme d'instabilité analogue se produit dans le cas du séchage d'une suspension de bentonite comprise entre deux sphères.

Qualitativement, on ne dispose que des observations finales concernant la manière dont les structures argileuses progressent dans l'empilement. Néanmoins, la géométrie particulière des voiles entre les billes (trajets d'iso-épaisseurs correspondant à des trajets circulaires) permet facilement de transposer le mécanisme de séchage dans un dièdre au cas de l'empilement poreux : l'air commence à pénétrer le fluide d'une manière radiale, puis se dirige derrière le front initial de séchage de façon circulaire (cf. section 4.5) . Une première instabilité se forme et puis des digitations d'air successives pénètrent dans le ménisque pour former ces voiles circulaires. On remarque que, par l'origine même du phénomène, il ne peut y avoir de cercles totalement fermés, puisque les parties ouvertes correspondent à l'entrée d'air (voir figures 4.10, 4.12).

### 4.8 Conclusion

Grâce à la suspension colloïdale de bentonite sodique combinée aux cycles imbibition-séchage dans les conditions du séchage décrites précédemment, nous avons obtenu un milieu consolidé à partir d'un milieu modèle initialement pulvérulent.

Suivant qu'on se trouve à la surface de séchage ou dans la masse de l'échantillon, la cohésion entre les billes du milieu poreux n'est pas la même. Cette différence est due essentiellement aux quantités d'argile retenues dans l'échantillon et aux morphologies des dépôts dans chacune des zones. En effet, les différentes observations microscopiques montrent qu'au niveau de la surface libre de séchage, un ciment argileux logeant au sein de la porosité du milieu contribue à la consolidation de cette couche. Par contre, dans la masse de l'échantillon où la concentration en colloïdes est beaucoup plus faible, les billes de verre sont reliées uniquement par des ponts et des voiles argileux très fragiles.

En réalisant d'autres expériences de séchage de suspensions dans des arrangements de billes de taille plus grande (5 mm) et dans des dièdres à angles faibles, on se rend compte qu'il se produit des phénomènes comparables de formation de

voiles d'argile entre les solides. Grâce à l'empilement monocouche de billes macroscopiques, nous avons réalisé un suivi dans le temps du processus de séchage de la suspension. D'après les observations, il semble donc que les zones de forte porosité se vident avant les zones de faible porosité. Ce résultat est en accord avec les résultats que nous avons obtenus au chapitre précédent concernant le séchage d'un empilement bicouche (cf. section 3.2.5). De plus, les formes de dépôts après séchage sont tout à fait comparables à celles que nous avons observées au niveau de la surface libre de l'échantillon modèle, à savoir un voile plan perpendiculaire à la direction de l'évaporation sur une ou deux rangées de billes, et des voiles circulaires reliant les billes entre elles dans le reste de l'échantillon. Par ailleurs, le séchage de la suspension dans le dièdre a aussi donné lieu à des formations de voiles symétriques entre les plans du dièdre.

Ces formations de voiles argileux, dans les différentes configurations, résultent de la déstabilisation du fluide lors de son mouvement de retrait lié à l'évaporation. Il a été démontré, à travers différentes expériences, qu'il n'existe pas de front de retrait très concentré à la surface de séchage, mais que la suspension est animée d'un mouvement d'ensemble de rétraction parce que sa concentration augmente d'une manière homogène si le séchage est suffisamment lent.

D'autre part, les développements théoriques de Ph. Coussot [22], dans le cas du séchage dans le dièdre, ont montré qu'on pouvait prédire avec une bonne estimation la distance à laquelle l'instabilité se produit en fonction du volume de la suspension et de sa concentration initiale. Cependant, pour le moment, il est beaucoup plus difficile d'expliquer la forme du labyrinthe qui se crée dans le dièdre au cours du retrait de la suspension.



## Chapitre 5

# Etude de paramètres mécaniques

### 5.1 Introduction

Malgré l'application d'importantes forces de pression-dépression, on constate une grande difficulté pour extraire les sédiments colmatants de l'intérieur des pores des chaussées poreuses lors des opérations de décolmatage. Ceci témoigne de la grande cohésion de ces matériaux.

En réalité, l'opération de décolmatage au niveau d'un pore est une opération très complexe : les différentes configurations des pores et la profondeur du produit colmatant par rapport à la surface de la chaussée ne facilitent pas son extraction. La figure 5.1 schématise un pore colmaté soumis à des forces de traction. Si après avoir aspergé la chaussée d'eau sous pression le colmatant n'est pas mis en suspension, alors on obtient une couche liquide entre le colmatant et la buse de traction de l'appareil de nettoyage de chaussées. Cette couche participe à la réduction des efforts appliqués au colmatant, ce qui augmente les difficultés du décolmatage. A toutes ces difficultés s'ajoute principalement la connaissance insuffisante du sédiment colmatant.

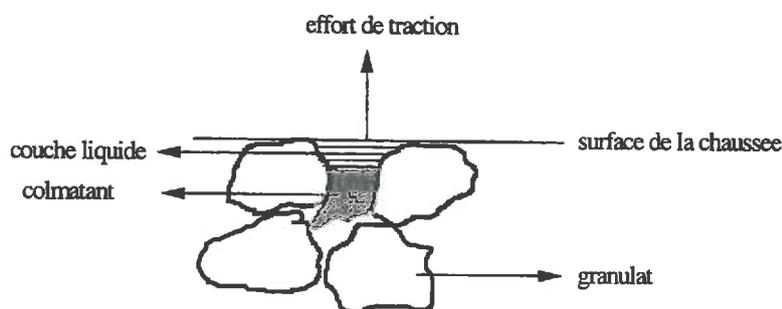


FIG. 5.1 - Pore colmaté soumis à des forces de traction

Le protocole expérimental de simulation du phénomène de colmatage conduit, comme nous l'avons déjà mentionné (cf. 4.1), à des échantillons hétérogènes se

composant de deux parties. La première partie consolidée (croûte de billes), se situe entre 3 et 5 mm de la surface de séchage. C'est cette partie qui sera concernée par les essais mécaniques. La deuxième partie pulvérulente, constitue le reste de l'échantillon. Bien qu'elle se compose de quelques agglomérats de billes, cette partie reste très friable même pour des concentrations en argile relativement élevées. Cet état de cohésion ne nous a pas permis d'effectuer des mesures mécaniques.

Compte tenu des faibles dimensions de la partie consolidée (plaque d'environ 3 cm x 3 cm et de quelques millimètres d'épaisseur) le seul essai mécanique de mise en oeuvre simple est un essai de flexion trois points. Il permet, sous réserve de vérification de quelques hypothèses, d'étudier l'effet de la présence de faibles quantités d'argile sur deux propriétés mécaniques : la contrainte à la rupture de traction et le module d'élasticité.

Une fois l'essai mis au point, nous avons vérifié la pertinence des mesures dans le cas d'une plaque mince d'acier permettant d'utiliser les formules de la résistance des matériaux et nous avons procédé à quelques calculs d'éléments finis pour estimer l'erreur commise en appliquant cette démarche au cas d'une plaque épaisse.

## 5.2 Présentation du dispositif expérimental

Le dispositif expérimental que nous avons mis au point [79, 80] est simple (fig. 5.2). Il est composé d'une plaque percée équipée de quatre tiges filetées sur lesquelles l'échantillon est simplement posé (fig. 5.3). Un réglage des vis permettra d'assurer (le mieux possible) un contact ponctuel sur chaque support. Par ailleurs, les efforts sont obtenus à l'aide de masses (petits écrous) déposées dans une coupelle. Cette dernière est reliée à l'éprouvette par un élastique (cela a été rendu nécessaire par la nature friable du matériau).

Le déplacement du centre de l'éprouvette est mesuré à côté de l'élastique par un capteur inductif dont le ressort de rappel a été préalablement ôté afin de diminuer les efforts parasites. La résolution du capteur est de l'ordre du dixième de micromètre pour les mesures réalisées. Le poids propre de la tige du capteur a été mesuré.

Les échantillons étudiés sont des plaques de billes-argile prélevées à la surface de séchage des milieux poreux modèles. Ils ont des dimensions d'environ 3 cm de longueur, de 2,5 cm de largeur et de 3 à 5 mm d'épaisseur.

## 5.3 Validation de l'essai

### 5.3.1 Essai sur feuillard d'acier

Une feuille d'acier de 0,1 mm d'épaisseur a permis de découper une éprouvette de dimensions semblables à celles des plaques en bille de verre. Nous avons réa-

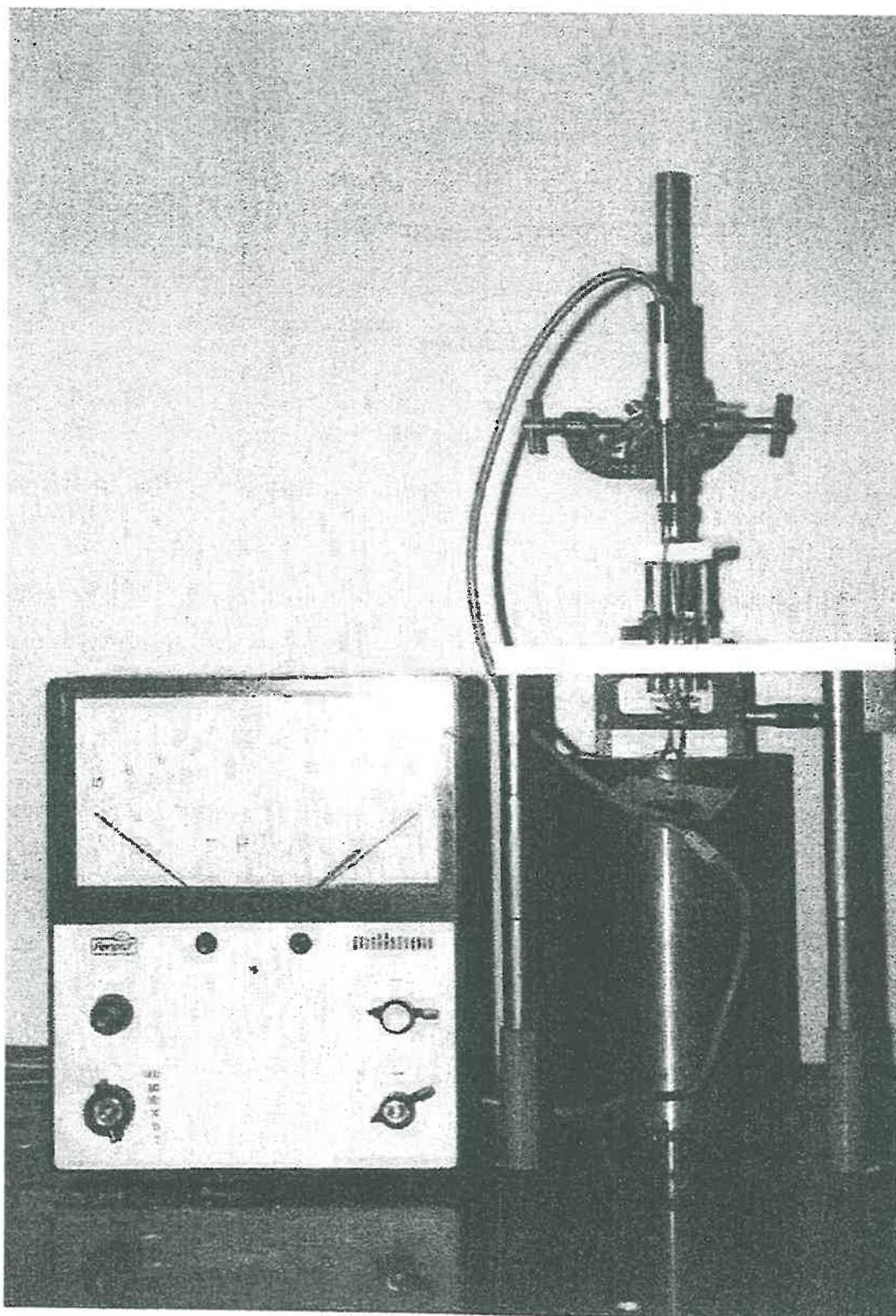


FIG. 5.2 - Photographie du dispositif expérimental

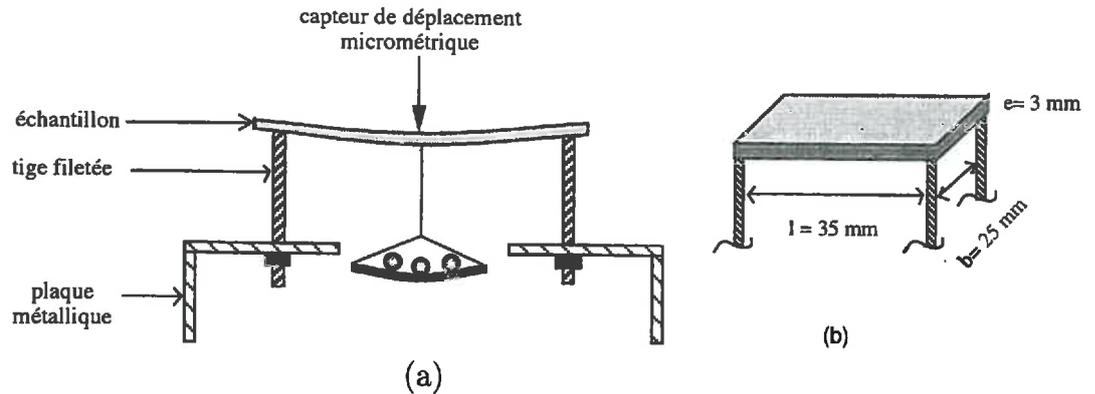


FIG. 5.3 - Essai de flexion trois points, (a) schématisation du dispositif expérimental, dimensions de l'échantillon (b)

lisé un premier essai et obtenu la courbe contrainte-flèche (fig. 5.4), la contrainte étant obtenue par :  $\sigma = \frac{M v}{I}$ , avec  $v = \frac{h}{2}$ ,  $I = \frac{bh^3}{12}$  où  $b$  représente la largeur de l'échantillon et  $h$  son épaisseur. Le moment de flexion est donné par :  $M = \frac{F l}{4}$ ,  $F$  est l'effort appliqué et  $l$  la longueur.

En utilisant alors le résultat classique  $f = \frac{Fl^3}{48I}$  qui relie la flèche mesurée à l'effort appliqué on obtient 270 GPa pour le module d'élasticité ce qui est un résultat acceptable pour un acier dont le module d'élasticité est en général de l'ordre de 210 GPa. Il est probable que la valeur du module élastique d'une tôle très mince soit différente de celle de l'acier dans la masse compte tenu des différentes opérations mécaniques qui en permettent l'obtention et du fait que la plaque ne soit pas strictement assimilable à une poutre. Il faut remarquer que nous n'avons pas constaté de déflexion de la feuille de clinquant suivant la largeur ce qui tend à valider l'hypothèse poutre pour le calcul.

### 5.3.2 Calcul par éléments finis

Afin de vérifier que les formules issues de la résistance des matériaux sont applicables dans le cas des éprouvettes de billes de verre, nous avons calculé à l'aide du code CESAR-LCPC les déplacements d'une plaque mince (de module d'élasticité  $E = 200 \text{ GPa}$  et de coefficient de Poisson  $\nu = 0,2$ ) simplement appuyée et soumise à une force centrée unitaire ( $P = 1 \text{ N}$ ), et comparé ce résultat avec le cas d'une poutre simplement appuyée chargée à la mi-portée.

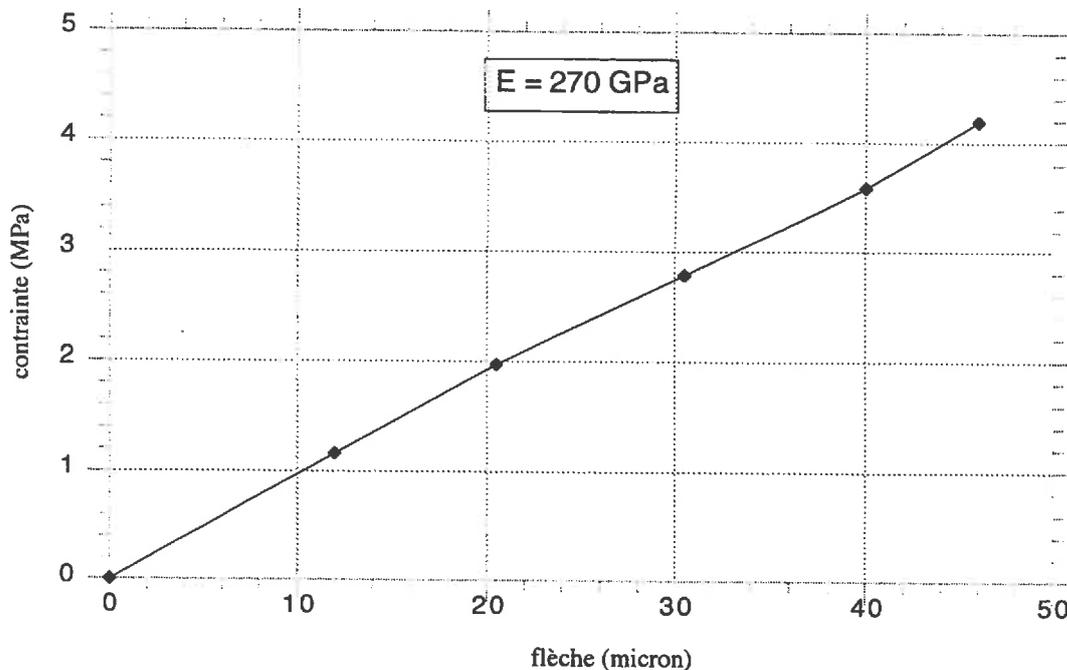


FIG. 5.4 - Relation contrainte-flèche du feillard d'acier

Dans le premier cas, le déplacement résultant est  $f_{cesarF} = 1.22 \cdot 10^{-3} m$ . Le calcul en résistance des matériaux donne une valeur  $f_{RDM} = 1 \cdot 10^{-3} m$ .

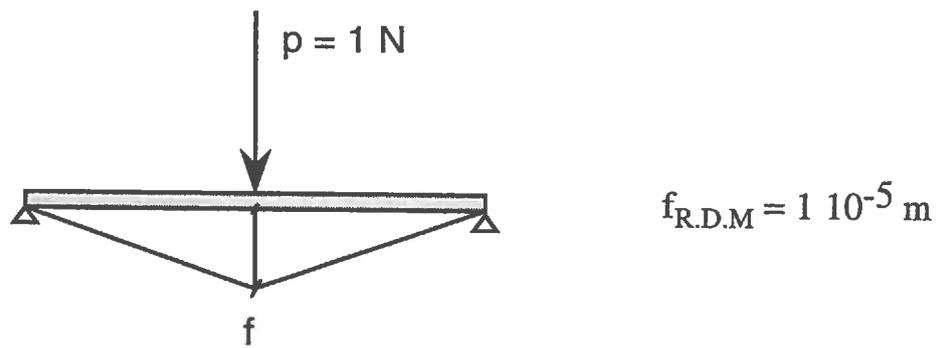
Nous avons également calculé le cas d'une plaque épaisse soumise à deux demi-efforts concentrés sur les bords de la plaque (fig. 5.5). Ce cas nous paraît le plus proche de la réalité car l'élastique utilisé ne peut pas appliquer d'effort réparti ni concentré au milieu de la plaque. Le résultat du calcul, dans le cas d'un module d'élasticité  $E = 1 GPa$ , d'un effort  $F = 1 N$  et d'un coefficient de Poisson  $\nu = 0,2$ , donne une flèche de  $f_{cesarF/2} = 1.09 \cdot 10^{-5} m$ .

Les différents résultats, pour des conditions de chargements identiques, sont du même ordre de grandeur. Nous assimilerons donc notre système à une poutre en flexion trois points pour la détermination des paramètres mécaniques des plaques de billes. L'erreur faite sera de l'ordre de 20 %.

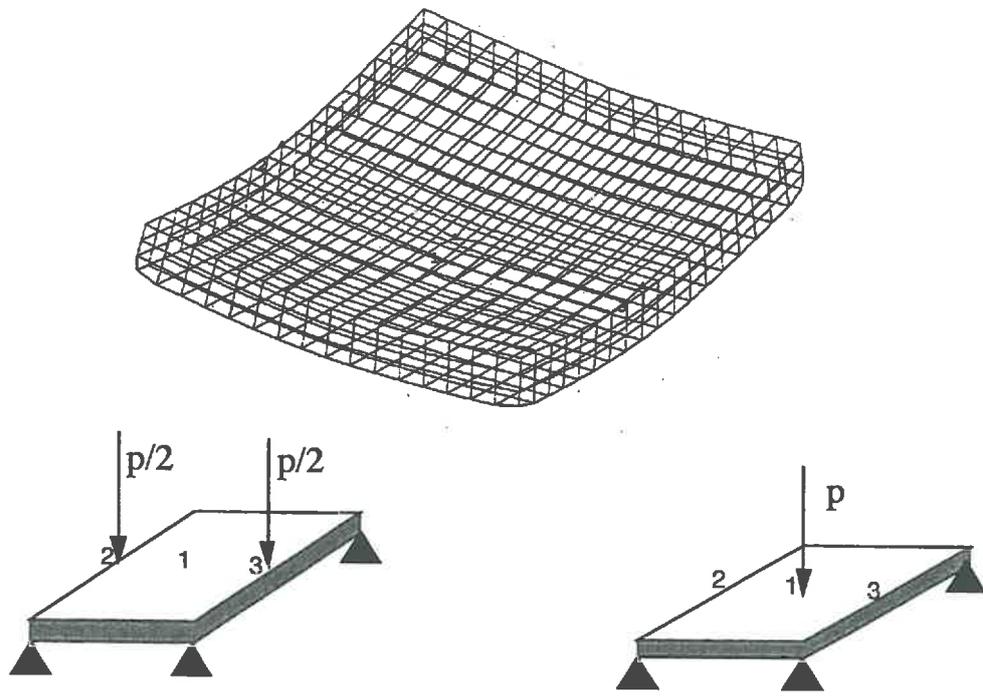
## 5.4 Application de l'essai aux croûtes de billes

On peut constater sur les différentes courbes contrainte-déplacement qu'il est difficile d'obtenir une parfaite linéarité malgré toutes les précautions prises. En fait nous avons reproduit de nombreuses fois ces essais (après 6 cycles d'imbibition-séchage) et assez systématiquement nous avons trouvé des courbes semblables, irrégulières en raison de la friabilité des échantillons (fig. 5.6). Nous avons effectué une régression linéaire pour déterminer le module élastique.

Nous avons également mené les essais jusqu'à rupture de l'échantillon, rupture



Dessin de la déformée Cesar-LCPC



Déplacement des points

1	$-7,56 \cdot 10^{-6}$
2	$-1,22 \cdot 10^{-5}$
3	$-1,22 \cdot 10^{-5}$

Déplacement des points

1	$-1,08 \cdot 10^{-5}$
2	$-7,54 \cdot 10^{-6}$
3	$-7,54 \cdot 10^{-6}$

FIG. 5.5 - Comparaison des résultats du calcul CESAR et du calcul RDM

toujours fragile. La valeur de la contrainte (estimée à partir de la résistance des matériaux) est de l'ordre de  $\sigma_{rupture} = 35 \text{ kPa}$  et le module d'élasticité est de l'ordre de  $E = 1 \text{ GPa}$ .

### *Remarques*

On a effectué ces déterminations sur des échantillons à différents stades d'imbibition. Les valeurs des paramètres mécaniques dépendent du nombre de cycle d'imbibition-séchage. Les figures 5.7 et 5.8 montrent que le module d'Young  $E$  et la contrainte  $\sigma_{rupture}$  augmentent linéairement avec la quantité d'argile retenue dans la croûte. La valeur du module d'élasticité de l'argile mesurée sur un film mince de bentonite est estimée à 6 GPa [115]. Nous obtenons après colmatage total des valeurs de l'ordre de 2 GPa. On peut donc conclure que l'élasticité du milieu est gouvernée par celle de l'argile déposée sous forme de voiles entre les billes.

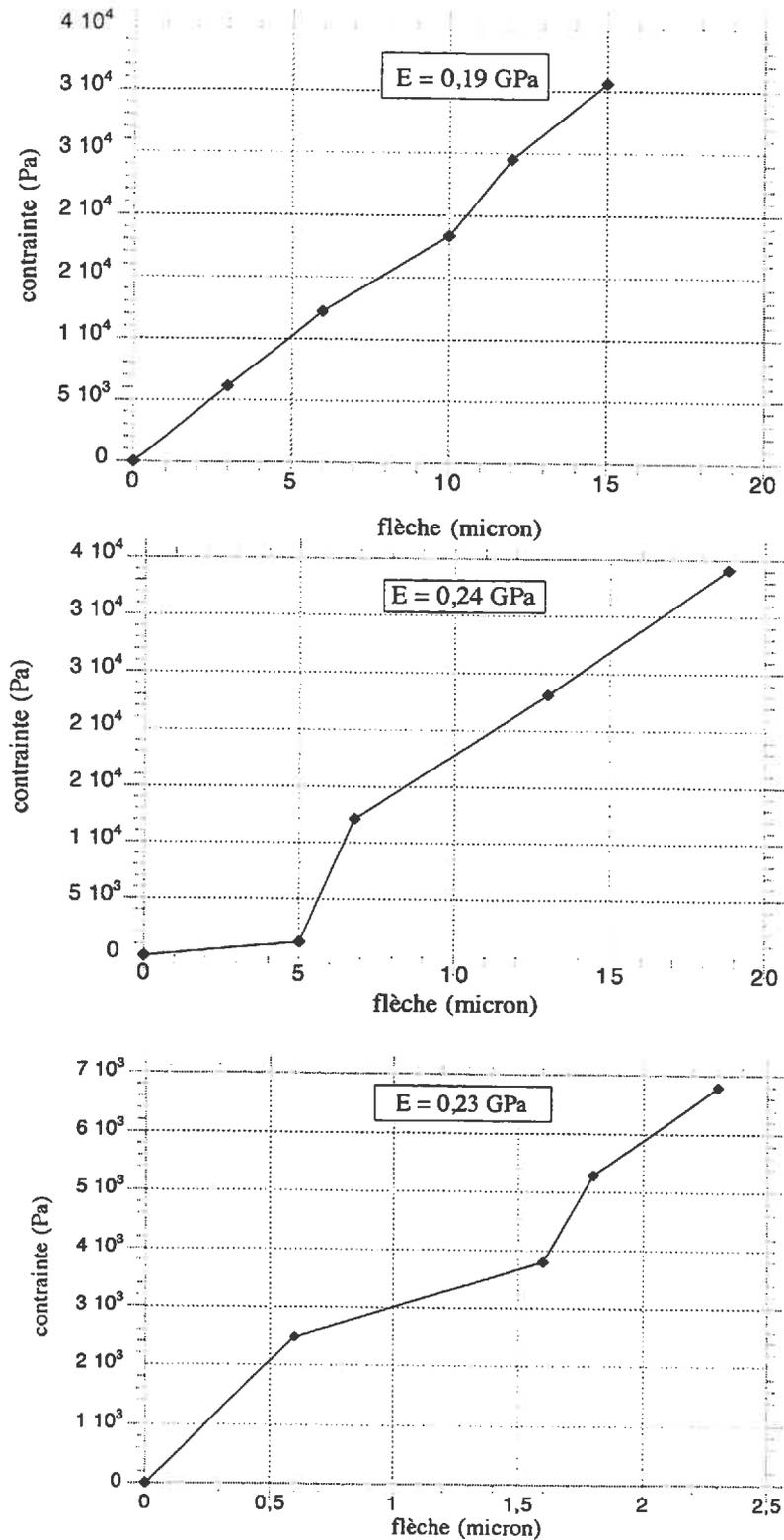


FIG. 5.6 - Relation contrainte-flèche des croûtes de billes après six cycles d'imbibition-séchage

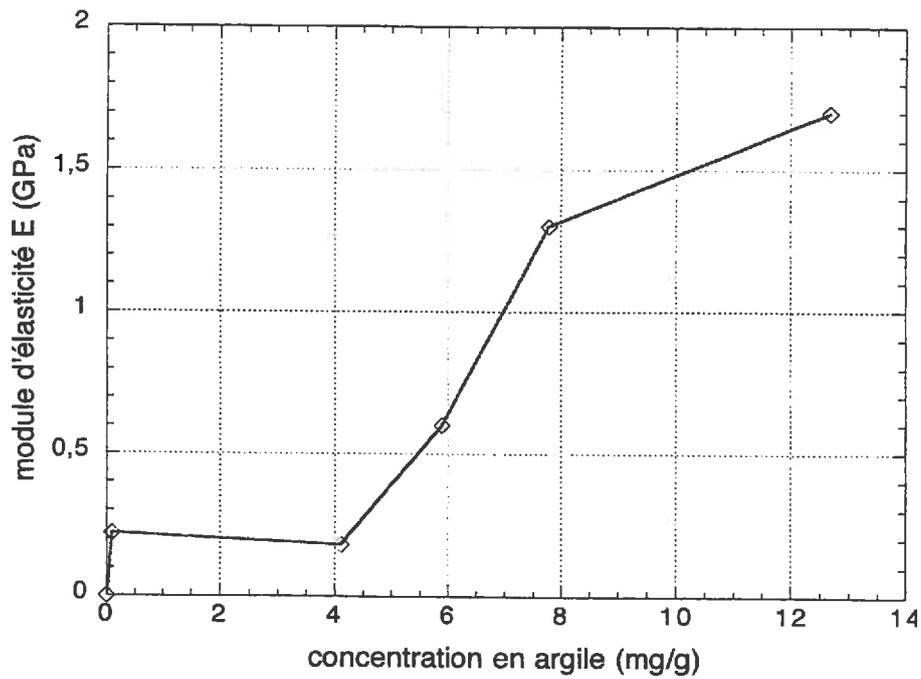


FIG. 5.7 - Relation entre le module d'élasticité et la concentration en argile

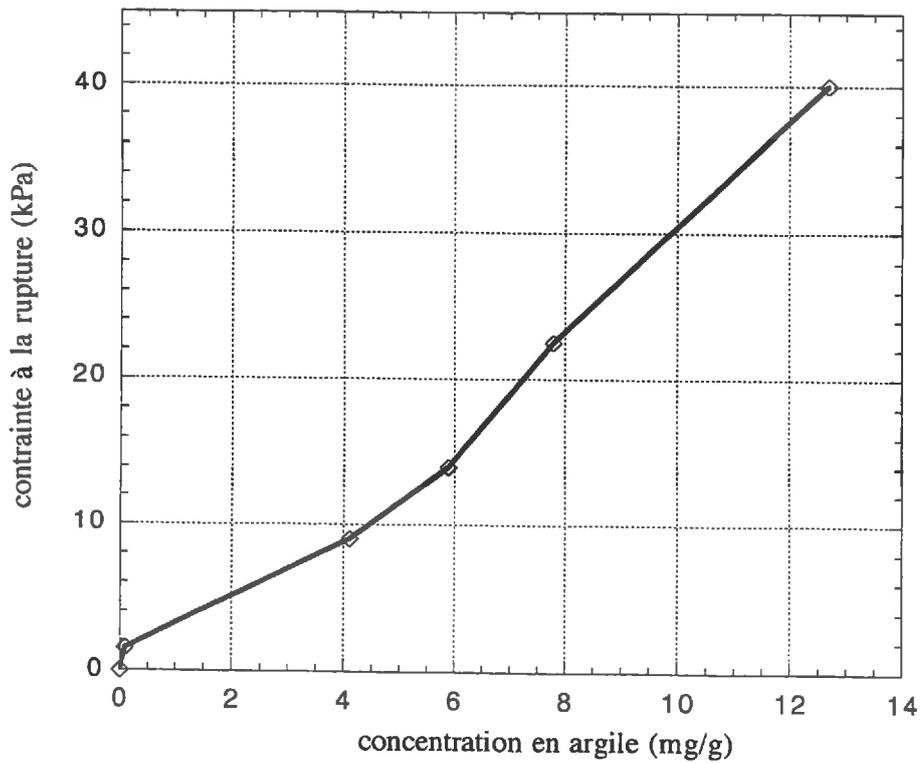


FIG. 5.8 - Relation entre la contrainte à la rupture et la concentration en argile

	E (GPa)	$\sigma$ (MPa)
croûtes de billes	1 - 2	0,1 - 0,04
film d'argile (Zabat [115])	6	40
chaussée	10 - 20	

TAB. 5.1 - *Module d'élasticité et contrainte à la rupture pour différents matériaux*

## 5.5 Conclusion

Nous avons vu à travers les chapitres précédents que suite aux différents cycles de séchage, les colloïdes migrent vers la surface libre de l'échantillon, se concentrent et forment un solide. La transformation de l'état pulvérulent à l'état solide est due à l'apparition de liens sous forme de "ciment" et de ponts argileux entre les grains du milieu. Ces derniers participent à la fois à la réduction de la perméabilité et au renforcement de la cohésion du milieu.

Ne possédant pas d'essai mécanique adapté à la taille et à la nature de nos échantillons, nous avons mis au point un système simple et reproductible fonctionnant comme un essai de flexion trois points, bien que les échantillons aient des proportions de plaques.

En effet, l'utilisation du code CESAR-LCPC pour un calcul numérique des déplacements aux centres des plaques donne des résultats tout à fait comparables au cas où on assimile notre système à une poutre simplement appuyée et chargée ponctuellement à la mi-portée.

En appliquant les lois de la résistance des matériaux, nous avons tracé la courbe contrainte-déplacement de l'ensemble billes-argile. Cette dernière révèle un comportement élastique fragile de la partie consolidée en surface des empilements.

Par ailleurs, on remarque que les valeurs des contraintes à la rupture et le module d'élasticité ne sont pas constantes mais dépendent de la quantité d'argile retenue au sein de l'échantillon et donc du nombre de cycles. Ces valeurs sont relativement importantes (voir tableau 5.1) compte tenu des faibles quantités d'argile retenues dans l'ensemble billes-argile.

On remarque aussi que plus la quantité d'argile augmente plus on s'approche du module d'élasticité en traction d'un film mince de bentonite d'une valeur de 6 Gpa [115]. Ceci montre que le comportement global de l'échantillon constitué de billes-argile est géré par l'ensemble des liaisons d'argile formées au cours des différents séchages.

On peut conclure finalement qu'on a obtenu en surface des échantillons une croûte de billes possédant d'importantes performances mécaniques malgré les faibles quantités d'argile. Reste après la difficulté de relier les résultats expérimentaux au cas réel d'un colmatant piégé dans un pore de chaussée.

## Chapitre 6

# Colmatage par des suspensions argile-bitume

### 6.1 Introduction

Nous avons étudié au chapitre 3, le colmatage d'un milieu poreux modèle soumis aux cycles imbibition-séchage par des suspensions de colloïdes de bentonite. Dans le présent chapitre, nous allons nous intéresser au cas des suspensions de particules de bentonite imprégnées de bitume en procédant dans les mêmes conditions d'écoulement que pour l'argile brute.

Les différentes analyses des colmatants de chaussées montrent la présence d'hydrocarbures à raison de 3 à 5 % [18]. Les principales sources d'apport en hydrocarbures sont le décapage de la pellicule de bitume des granulats de surface des chaussées, l'abrasion des pneumatiques, les pertes de combustible, de lubrifiant des véhicules et la combustion incomplète des carburants. Pour étudier l'effet du bitume sur la cohésion du colmatant, nous pouvons envisager deux cas possibles: le cas où le bitume interagit seulement avec les grains constituant le colmatant et le cas où le bitume a la possibilité d'interagir avec les autres entités du sédiment colmatant (par exemple l'argile).

Le type expérience envisagé pour illustrer le premier cas est basé sur le raisonnement suivant: nous savons que la chaussée colmatée est composée de gros grains enrobés de bitume dont les pores sont occupés par un sédiment colmatant qui s'accumule au cours du temps. Nous avons appelé ce colmatant le colmatant primaire, il est composé essentiellement d'un sable grossier.

Nous voulons, à travers un essai simple, connaître l'effet du bitume chauffé dans l'ensemble de l'empilement (grains enrobés de bitume et sable fin), provoquée par une augmentation de température. Il s'agira de vérifier si au chauffage, les forces capillaires engendrées au sein des sédiments fins sont suffisamment importantes pour attirer le bitume dans leurs structures et former des ménisques entre les grains. Au refroidissement, ces ménisques pourraient se transformer en

ponts solides liant les grains entre eux.

Cette idée bien que simple est de réalisation difficile en pratique, car il s'agit dans un premier temps de chauffer des grosses billes (quelques millimètres) avec des morceaux de bitume pour fabriquer un solide relié par des ponts de bitume après refroidissement (fig. 6.1, a). Il faudra ensuite trouver un essai mécanique pour rompre les liaisons entre les billes et obtenir des grains individuels recouverts partiellement de bitume. La suite de l'essai consiste à mélanger ces billes avec des billes de tailles plus petites (une centaine de microns environ), mettre à l'étuve et étudier le comportement du bitume dans l'empilement mixte (fig. 6.1, b).

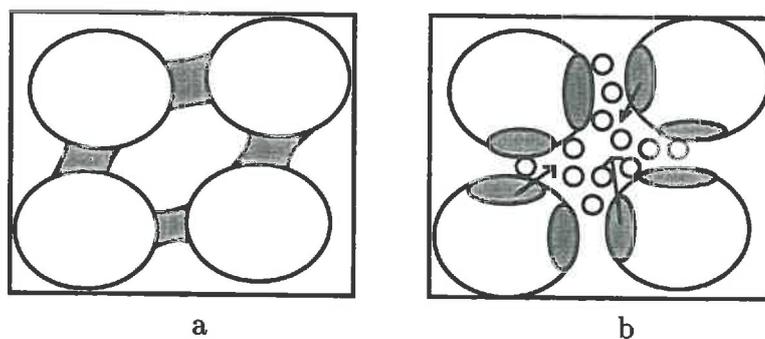


FIG. 6.1 - Grosses billes reliées par des ponts de bitume (a), mélange de grains fins avec de grosses particules maculées de bitume (b)

Cette expérience n'a pas été réalisée, car non seulement elle est difficile mais en plus elle ne prend pas en compte l'effet des cycles imbibition-séchage, ni les éventuelles interactions entre d'autres entités (par exemple les colloïdes minéraux).

Par conséquent, nous avons cherché une autre manière de procéder : se basant sur les résultats de quelques travaux précédents dans le domaine des interactions entre les colloïdes organiques et les colloïdes minéraux [36], nous avons préparé des suspensions de particules de bentonite entourées de bitume. En effet, il existe des interactions par forces de Van der Waals qui font que les colloïdes organiques (bitume) se fixent sur les colloïdes argileux. Le mode de préparation des particules argile-bitume est décrit ultérieurement dans ce chapitre.

Dans ce qui suit, nous allons étudier les effets combinés des suspensions argile-bitume et des cycles d'imbibition-séchage sur la perméabilité et la cohésion du milieu granulaire en procédant de la même façon qu'au chapitre 2.

Les particules argile-bitume obtenues ont les mêmes caractéristiques granulométriques que la bentonite brute. En suspension, dans le milieu modèle, elles manifestent les mêmes phénomènes de distribution uniforme à l'état humide et de migration vers la surface après séchage. Néanmoins, on note une interaction par rétention de colloïdes dans le milieu poreux au cours de l'écoulement des particules de bentonite à pourcentage élevé de bitume.

## 6.2 Interaction colloïdes organiques-argiles

Dans les sols naturels, les colloïdes organiques sont le résultat de transformations (dégradations) des matières organiques libres en acide humique et acide fulvique [112]. Les colloïdes humiques peuvent être décrits par les mêmes propriétés physico-chimiques que les colloïdes minéraux : ils se caractérisent par une surface spécifique, une capacité d'échange cationique importante [47] et une charge spécifique négative qui dépend du degré d'évolution de la matière organique.

Les colloïdes minéraux et humiques sont tous les deux composés de particules électronégatives. Les liaisons directes ne peuvent donc être que du type Van der Waals dues à la différence de polarité entre les deux colloïdes [112].

La fixation des composés organiques (humiques) n'apparaît que sur les surfaces externes (latérales et basales) des argiles tant que le pH n'est pas inférieur à 4 [106]. Chassin [16] exclue toute fixation interfoliaire des colloïdes organiques dans le cas des smectites.

Le composé organique qui nous intéresse plus particulièrement dans ce chapitre est le bitume.

Le bitume est un mélange complexe issu de la distillation du pétrole brut. Un traitement à l'heptane normal permet de séparer le bitume en deux fractions :

- les maltènes (solubles) : ils représentent environ 70 à 90 % du bitume dont 40 à 60 % sont des huiles. La séparation par chromatographie permet de différencier les huiles et les résines.
- les asphaltènes (insolubles) : ils représentent environ 10 à 30 % du bitume. Les molécules d'asphaltènes ont une tendance très marquée à former des associations moléculaires (micelles), ce qui explique leurs masses moléculaires élevées allant de 2000 à 6700 dalton d'après Koots et Speight [63].

Pour une revue détaillée sur les bitumes, on pourra se reporter aux travaux de Dron et al. [28], Brion [10], Vaillant, Durrieu [111] et Brulé, Zumer [14].

Les modèles relatifs à la structure colloïdale du bitume ont été proposés depuis 1924 par Nellenstein [81]. Il considère celui-ci comme un système constitué d'une dispersion de micelles d'asphaltènes dans un milieu d'hydrocarbures. Les micelles sont formées à partir d'un noyau d'asphaltènes stabilisé par une couche de résines adsorbées. Les micelles se présentent sous la forme d'agrégats ordonnés de feuillets plans ayant un rayon compris entre 8,5 et 15 Å, et une épaisseur comprise entre 16 et 20 Å. Ces feuillets sont liés entre eux par des chaînes aliphatiques (fig. 6.2) [10].

Dans le domaine routier, l'étude des interactions surfaces minérales-bitume a été largement abordée, car la présence d'argile dans les granulats destinés aux travaux de génie civil (les bétons, les enrobés bitumineux des assises de chaussées et les bandes de roulement) peut provoquer, à cause du gonflement de l'argile en présence de l'eau, la perte de la résistance mécanique et au bout du compte une possible destruction de la chaussée.

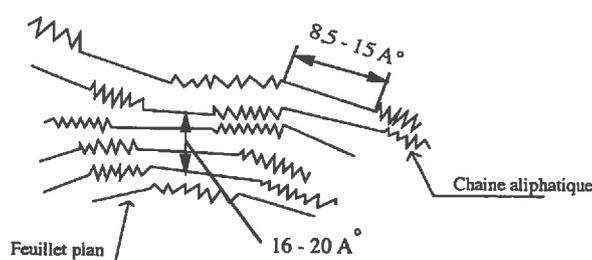


FIG. 6.2 - Représentation schématique d'une micelle d'asphaltène d'après Yen 1948

$\lambda$ (nm) =	Bentonite		Kaolinite		Quartz	
	254	340	254	340	254	340
Cyclohexane	20	12,5	60	65	17,5	17,5
Toluène	11	7,5	35	35	12,5	4,8

TAB. 6.1 - Quantité de bitume (en millièrme) adsorbée à la monocouche d'après Frouin

Parmi ces travaux, nous avons retenu essentiellement l'étude expérimentale menée par Laurent Frouin [36]. Il met en contact un bitume solvato avec des surfaces minérales (kaolinite, bentonite et quartz), il trace les isothermes d'adsorptions et dose en ultra-violet à deux longueurs d'ondes différentes les quantités de bitume adsorbées à la monocouche (recouvrement de l'argile par une couche de molécules de bitume) pour différents solvants (cyclohexane et toluène) : du fait de l'adsorption de bitume, la kaolinite et la bentonite perdent respectivement 30 % et 77 % de leurs surfaces B.E.T (Braumnuer, Emmet et Teller) initiales (tableau 6.1). Cette perte est due à l'occupation par le bitume de sites initialement accessibles aux molécules d'azote. Malheureusement, les valeurs au bleu des produits finaux n'ont pas été mesurées, nous ne disposons donc pas de points de comparaisons entre les valeurs au bleu que nous avons obtenues pour les particules de bentonite-bitume et d'autres études.

### 6.3 Mode de préparation

Pour la préparation des mélanges argile-bitume, nous avons sélectionné une fraction de bentonite de dimensions inférieures à  $50 \mu\text{m}$ , un bitume routier de la catégorie 60-70<sup>1</sup> et un solvant du bitume le disulfure de carbone ( $\text{CS}_2$ ).

Les particules d'argile recouvertes par différents pourcentages en poids de bitume sont obtenues grâce au distillateur rotatif sous vide le ROTAVAPOR du

1. 60-70 désignent la pénétration ou l'enfoncement en dixièmes de millimètres d'une aiguille calibrée soumise à une charge de 100 g pendant 5 secondes à la température de 25 °C.

type Buchi 105467 (voir figure 6.3). Les différentes étapes de l'opération sont les suivantes :

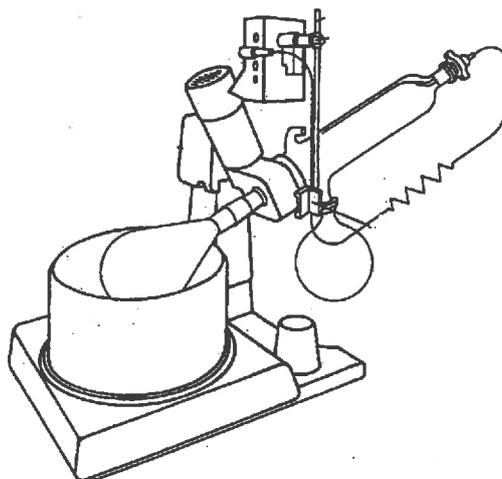


FIG. 6.3 - *Le ROTAVAPOR*

- dix grammes d'argile sont mis en suspension dans  $50\text{ cm}^3$  de  $CS_2$  (le  $CS_2$  est un solvant apolaire qui joue vraisemblablement un rôle mineur dans l'adsorption sur les argiles (voir remarque), et qui en plus il a l'avantage d'être très volatil : il s'évapore à  $40\text{ }^\circ\text{C}$ ),
- 2 à 10 % en poids de bitume sont solvatés dans  $50\text{ cm}^3$  de  $CS_2$  et transvasés dans le ballon avec l'argile,
- le contenu total du ballon est animé pendant 20 minutes environ d'une vitesse de rotation de l'ordre de 40 tr/mn, tandis que le fond du ballon baigne dans un bain-marie maintenu à une température constante de  $20\text{ }^\circ\text{C}$  environ,
- la mise sous vide du système provoque une condensation du  $CS_2$  dans le condenseur oblique, et écoulement de ce dernier dans un ballon de récupération du solvant,
- le composé argile-bitume obtenu est mis à l'étuve à  $25\text{ }^\circ\text{C}$  pendant 24 heures pour éliminer les résidus éventuels de  $CS_2$ .

**Remarques :**

- Pour les caractéristiques du bitume utilisé se reporter à la thèse de L. Frouin [36].

- Toutes les opérations avec le  $CS_2$  se déroulent sous hotte, car ce solvant est toxique et très inflammable.
- Les résultats des distributions sur un cycle d'imbibition-séchage par une suspension d'eau distillée et de particules de bentonite traitée au  $CS_2$  (on effectue toutes les opérations décrites précédemment sans le bitume) donnent un comportement identique au comportement des suspensions de bentonite non traitée (fig.6.4).

Nous obtenons à l'état humide  $\bar{\sigma}_{rh,arg-bitume} = 0,24 \text{ mg/g}$ , et après séchage : pour la première couche  $\bar{\sigma}_{rs1,arg-bitum} = 0,43 \text{ mg/g}$  et dans la masse  $\bar{\sigma}_{rs2,arg-bitum} = 0,16 \text{ mg/g}$ .

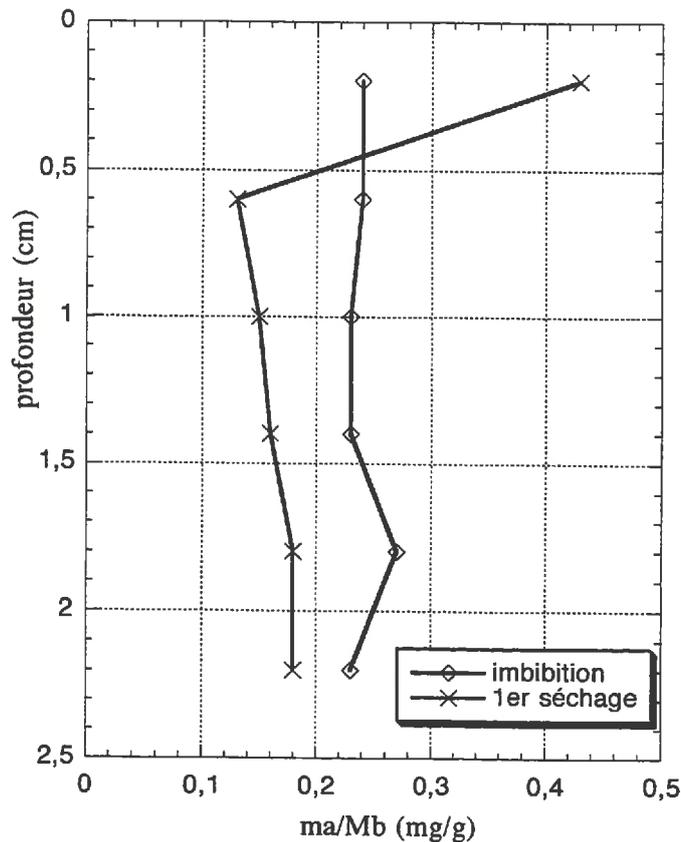


FIG. 6.4 - Distribution de colloïdes au premier cycle (suspension de bentonite traitée au  $CS_2$ )

Ainsi, on exclut la possibilité de modifications microstructurales des particules de bentonite dues à ce solvant.

## 6.4 Etude comparative

### 6.4.1 Courbes granulométriques

Les mélanges argile-bitume obtenus se présentent sous la forme d'une poudre non agglomérée et non hydrophobe. Nous comparons en figure 6.5 la distribution granulométrique de ces différentes particules.

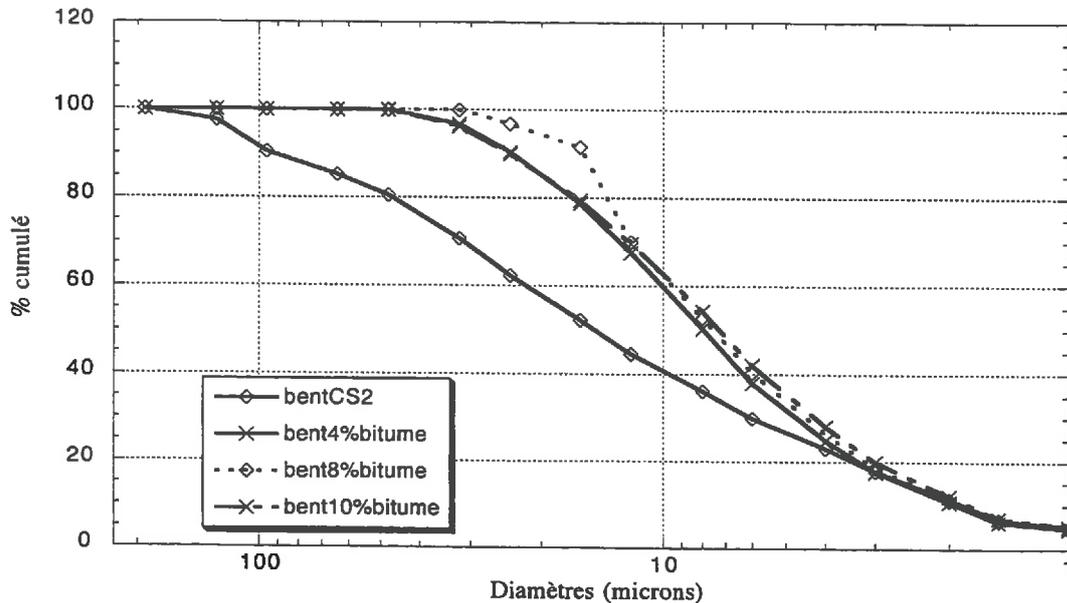


FIG. 6.5 - Comparaisons des granulométries Laser

On remarque que les distributions des granulométries Laser se localisent dans un même fuseau granulométrique, mises à part les particules traitées au  $CS_2$  qui apparemment ont un diamètre moyen de  $14,8 \mu\text{m}$  supérieur au diamètre moyen des particules enrobées de bitume qui est de l'ordre de  $7,6 \mu\text{m}$ . Il nous semble difficile de tirer des conclusions de cette modification, du fait que la distribution des particules traitées au  $CS_2$  est identique à celle des particules brutes. En outre, le nombre d'essais même reste insuffisant : une seule préparation de bentonite-traité au  $CS_2$ , et une seule courbe granulométrique.

#### Remarque :

Les courbes granulométriques des bentonite-bitumes obtenues par le Sédigraph (du type Sédigraph 5000) ne sont que très peu satisfaisantes car l'appareil ne distingue qu'une faible fraction (environ 20 % seulement) de l'échantillon total (fig. 6.6). Le principe de mesure des dimensions de particules est basé sur la loi de Stokes pour la sédimentation [65], il devient difficilement applicable pour les particules colloïdales dont la vitesse de sédimentation est très faible, voir nulle pour les suspensions colloïdales stables.

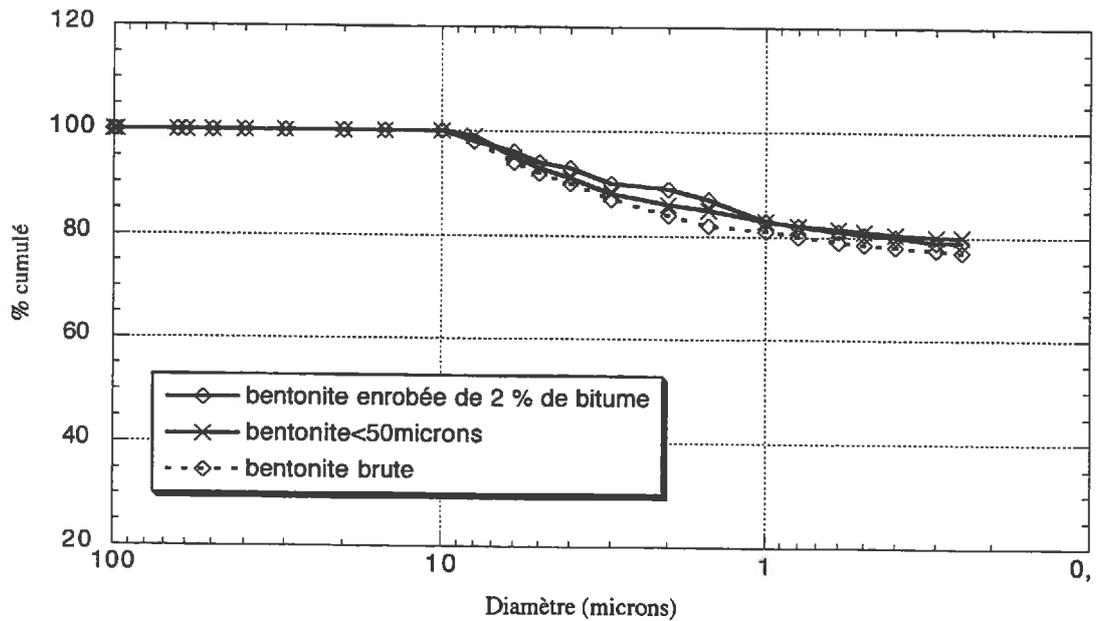


FIG. 6.6 - *Granulométries sédigraph de l'argile*

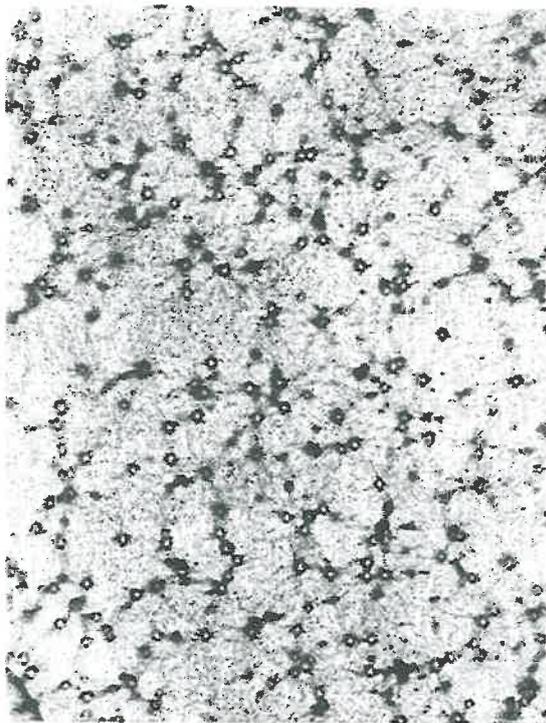
#### 6.4.2 Observations de films d'argiles au microscope

Nous avons prélevé environ  $30 \text{ cm}^3$  des suspensions à  $1 \text{ g/l}$  d'argile pure et d'argile-bitume aux différents pourcentages (2%, 4%, 8% et 10%) dans des petits béchers en plastique. Il résulte du séchage de ces suspensions à  $60^\circ \text{C}$  des films fins (0,1 mm environ d'épaisseur) dans le fond du récipient. La suspension d'argile pure donne des films de couleur jaune. Tandis que les suspensions d'argile-bitume donnent un dégradé de films marron plus ou moins foncé en fonction du pourcentage d'argile.

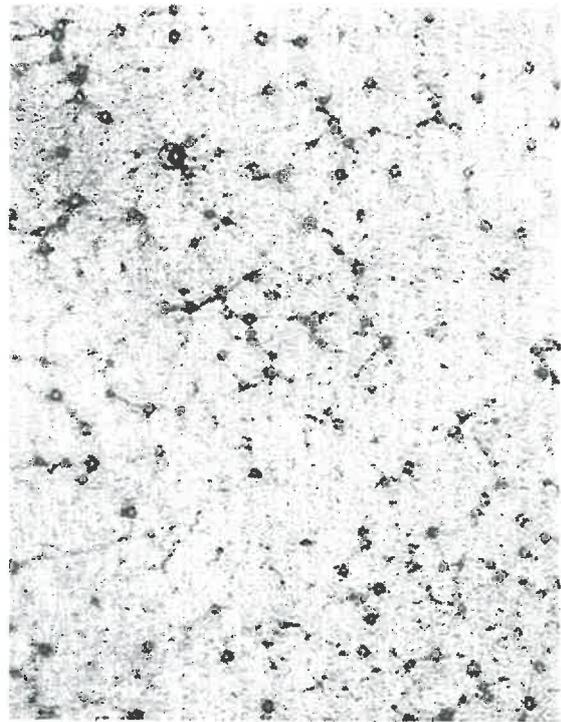
#### Microscopie optique

Les observations des films argile et argile-bitume ne montrent pas de différences dans les microstructures. Dans les deux cas, le film est constitué de voiles plissés orientés vers des centres apparemment circulaires et qu'on appellera "centres d'évaporations" (fig. 6.7).

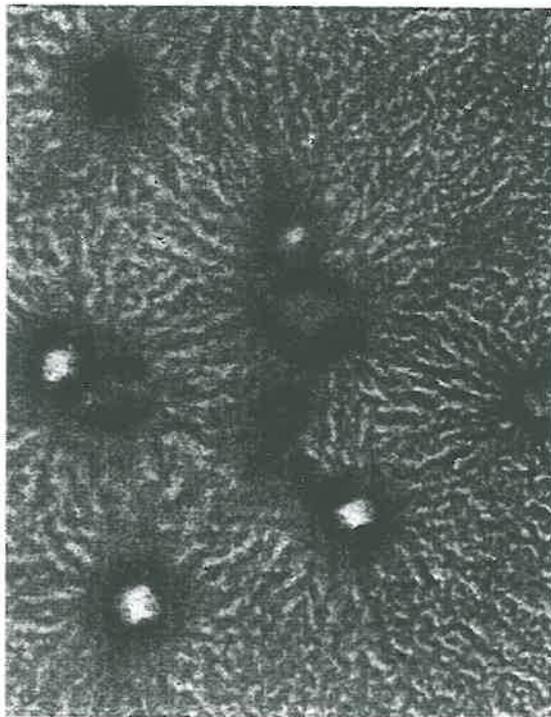
N'ayant pas obtenu des informations sur la localisation du bitume dans les voiles argileux, nous avons eu recours au microscope électronique à balayage en espérant obtenir plus d'indications grâce à des grossissements plus importants.



(a)



(c)



(b)



(d)

FIG. 6.7 - (a) et (b) film d'argile sans bitume ( $\times 50$ ,  $\times 400$ ), (c) et (d) film d'argile à 10 % bitume ( $\times 50$ ,  $\times 400$ )

### Microscope électronique à balayage

Les photographies au microscope à balayage électronique montrent que ce qui nous a semblé être des "centres d'évaporations" sont en réalité des grains de forme hexagonale de l'ordre de 30 microns environ (fig.6.9). Néanmoins, on ne note toujours pas de différences entre les deux types de films.

L'analyse chimique des ions chlorure de la bentonite à l'aide du potentiomètre METROHM révèle la présence de chlorure de sodium à raison de 1 g de sel pour 100 g d'argile. Il serait donc fort probable que les structures cristallines observées au microscope soient du sel.

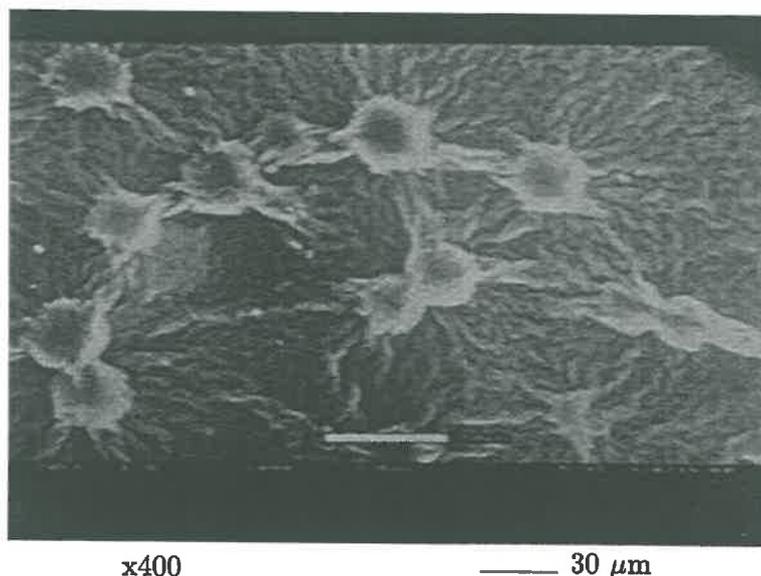
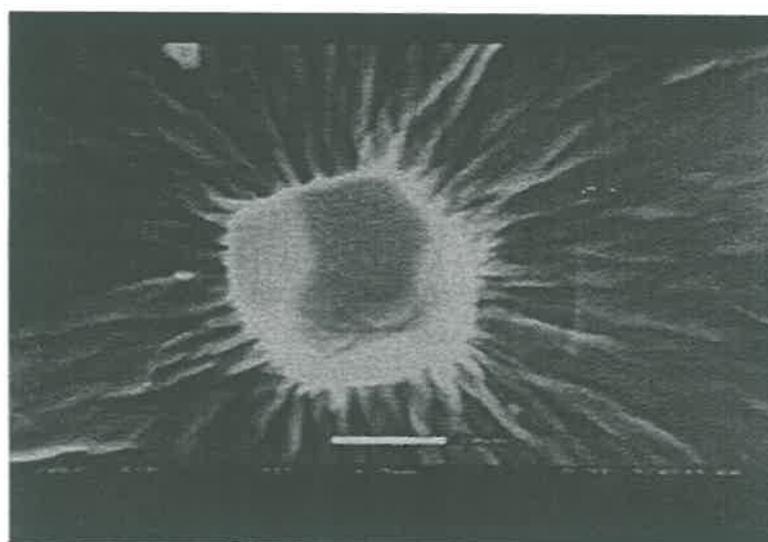


FIG. 6.8 - *Formes des voiles se dirigeant vers des centroïdes*

### 6.4.3 Valeur au bleu

Nous rappelons que la méthode d'adsorption au bleu de méthylène donne une estimation de la surface spécifique totale, tandis que la méthode B.E.T donne une évaluation de la surface spécifique externe. Les travaux de Burford et al. [15] et Guyot [47] ont mis en évidence l'influence de la matière organique sur la surface spécifique des sols. Ils constatent des effets inverses suivant que la mesure se porte sur la surface totale ou la surface externe. La figure 6.10 souligne une diminution de la surface B.E.T en fonction de la teneur en matière organique (M.O.) : les mesures B.E.T effectuées par Frouin confirment ce résultat. Inversement, la surface totale augmente avec l'augmentation de la teneur en matière organique.

Contrairement aux résultats de [15, 47] concernant la surface totale, nous avons constaté une augmentation de la surface totale d'un échantillon de colma-



x915

15  $\mu\text{m}$ 

FIG. 6.9 - *Détail d'un centroïde: grain de forme hexagonale vers lequel sont orientés les plissements de voiles*

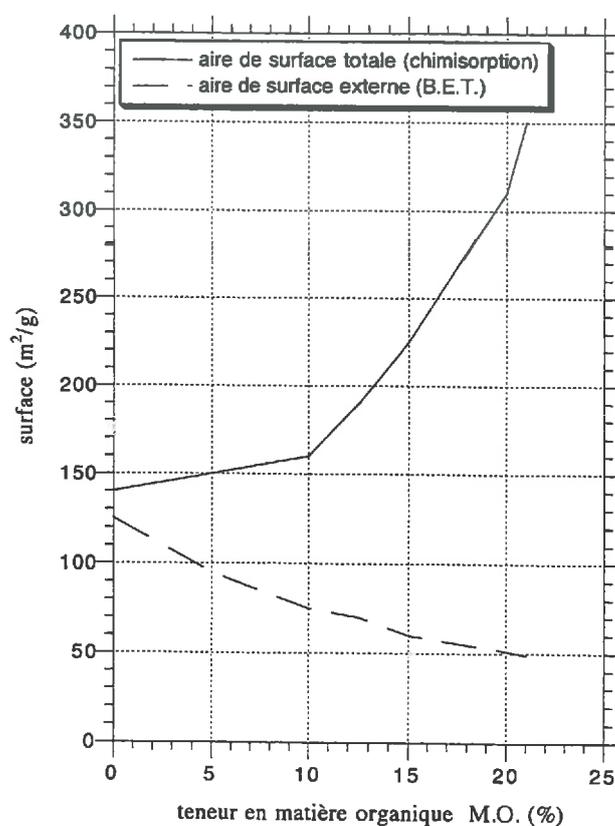


FIG. 6.10 - *Influence du taux de la matière organique (% M.O.) sur la surface spécifique des argiles de Haute Vienne (Guyot [47])*

tant après élimination des matières organiques. En effet, lors de nos essais au bleu sur des boues de décolmatages brutes et des boues traitées à l'eau oxygénée ( $H_2O_2$ ) (élimination des matières organiques) [93], on constate une augmentation de la valeur au bleu de l'ordre de 40 % par rapport à la valeur au bleu du matériau non traité (en considérant seulement la fraction inférieure à  $50 \mu m$  on obtient  $V_{Bnontraite} = 0,58$  et  $V_{Btraite} = 0,82$ ).

En ce qui concerne les poudres d'argile-bitume, nous n'avons pas noté d'augmentation de la valeur au bleu avec la quantité de bitume. La figure 6.11 illustrant la variation de la valeur au bleu en fonction du pourcentage du bitume, montre une décroissance progressive. Elle atteint environ 20 % pour les particules à 10 % de bitume.

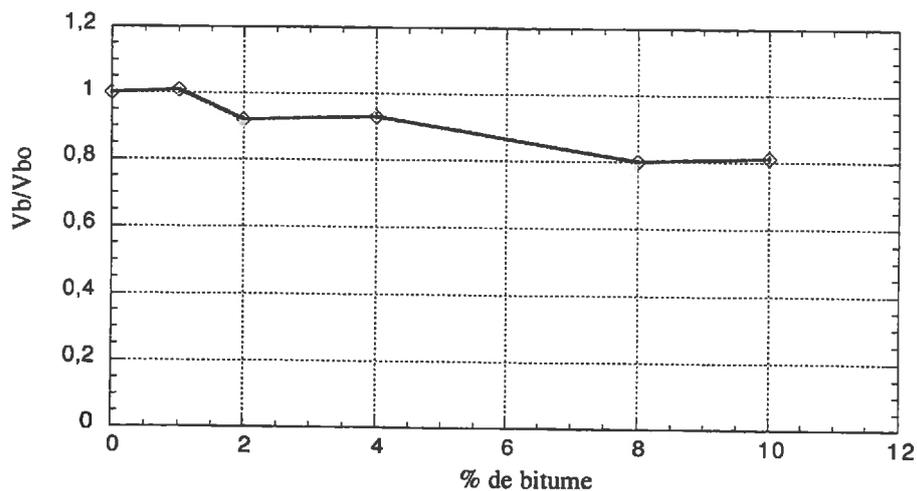


FIG. 6.11 - Variation de la valeur au bleu en fonction du pourcentage de bitume

**Remarque :**

- Le traitement à l'eau oxygénée dure pendant plusieurs jours, car chaque ajout d'eau oxygénée provoque la formation d'une mousse, ce qui se traduit par un dégagement d'oxygène et par la disparition progressive des matériaux organiques.
- La perte en poids après traitement du matériau n'a pas été mesurée.

## 6.5 Distributions des colloïdes à 10 % de bitume

Dans les mêmes conditions qu'au chapitre 2, nous avons effectué des cycles d'imbibition-séchage par la suspension des colloïdes argile-bitume. Nous avons dosé au bleu les colloïdes aux états sec et humide, mesuré la perméabilité au

cours des différents écoulements et observé au microscope les morphologies des dépôts après séchage.

Compte tenu des résultats de Frouin [36], nous avons effectué dans un premier temps des imbibitions avec une suspension à 1 g/l de colloïdes à 2 % de bitume. À l'issue de deux cycles d'imbibitions on remarque le même comportement et les mêmes distributions qu'avec la bentonite pure (fig. 6.12). En effet, la valeur au bleu des particules à 2 % de bitume est relativement égale à la valeur au bleu de la bentonite brute. Ceci est dû peut être au fait que la quantité de bitume utilisée est insuffisante pour couvrir complètement (enrober) les particules argileuses et ainsi empêcher le bleu de méthylène d'accéder à la porosité interne des particules. En revanche, la valeur au bleu de l'argile à 10 % de bitume est réduite d'environ 20 % par rapport à la valeur au bleu de l'argile brute (fig. 6.11). Il semble donc que pour des pourcentages de bitume plus élevés que 2 %, les particules argileuses réagissent à la présence du bitume, bien que nous n'ayons pas décelé de différences de films d'argiles lors des observations au microscope.

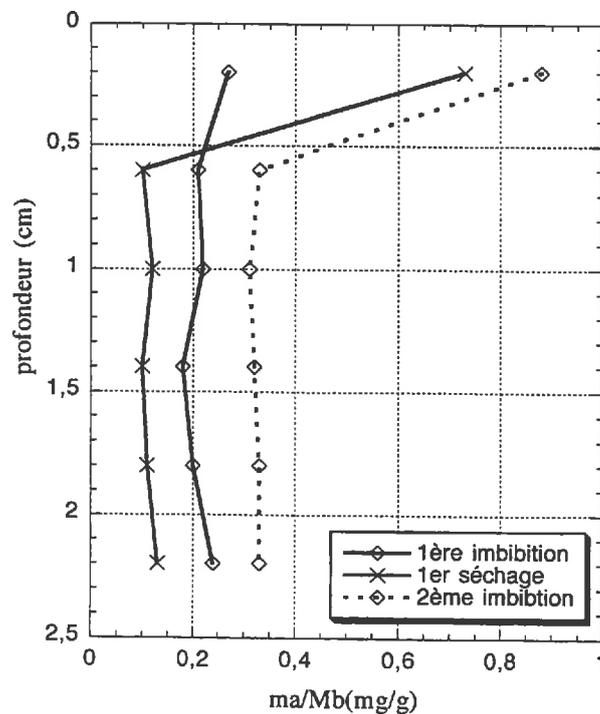


FIG. 6.12 - Comportement de la suspension d'argile à 2 % de bitume

Nous avons donc décidé de mener des expériences d'écoulement de suspension de bentonite à 10 % de bitume : si pour cette teneur en bitume, on n'obtient pas de différence dans les distributions de colloïde, on en conclue qu' il n y aura pas de modifications dans le comportement des argiles à teneurs plus faibles en bitume (4 %, 6 % et 8 %).

Nous présenterons dans ce qui suit, les différents résultats concernant les particules d'argile à 10 % de bitume.

### 6.5.1 Premier cycle

#### Courbe d'effluent

La figure 6.13 représente la variation de la concentration de l'effluent obtenue par la méthode de turbidimétrie [24]. Comparée à la courbe d'effluent au premier cycle de l'argile pure, on remarque que cette dernière n'atteint pas la concentration initiale  $C_0$  même après écoulement d'un volume de suspension double ( $600 \text{ cm}^3$ ) par rapport au premier essai.

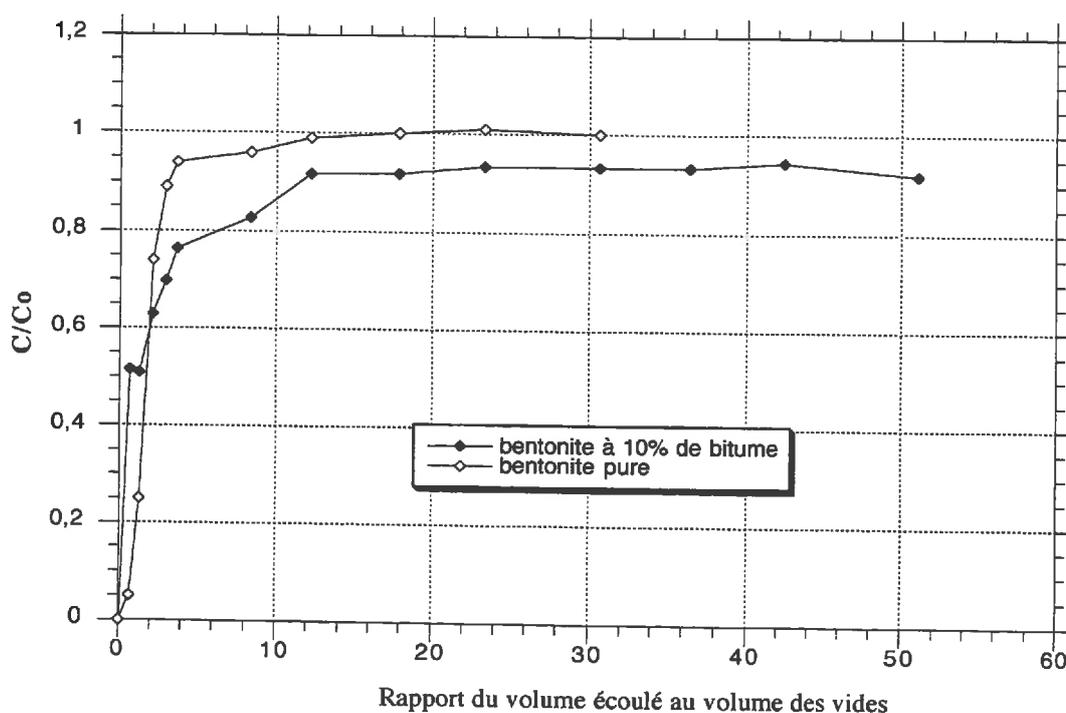


FIG. 6.13 - Variation de la concentration de l'effluent en fonction du volume de suspension écoulée divisée par le volume des pores

#### Remarque :

Le décalage entre les branches montantes des deux courbes est dû probablement à une mauvaise estimation du volume mort écoulé avant la prise de mesure.

#### Distribution dans le massif poreux au premier cycle

Sur la figure 6.14, sont comparées les distributions de la suspension à 1 g/l d'argile pure et d'argile à 10 % de bitume. On constate que la concentration de

cette dernière dans l'échantillon est double par rapport à l'échantillon d'argile pure. Ceci est en accord avec le résultat de la courbe d'effluent (on n'atteint pas  $C_0$  au cours de l'écoulement), signe d'une rétention par interaction des colloïdes-bitume avec les particules du milieu poreux.

On obtient à l'état humide :

$$\bar{\sigma}_{rh,arg} = 0,23 \text{ mg/g} \quad \bar{\sigma}_{rh,arg-bitume} = 0,41 \text{ mg/g}$$

et à l'état sec :

- pour la première tranche

$$\bar{\sigma}_{rs1,arg} = 0,44 \text{ mg/g} \quad \bar{\sigma}_{rs1,arg-bitum} = 0,89 \text{ mg/g}$$

- pour la masse :

$$\bar{\sigma}_{rs2,arg} = 0,16 \text{ mg/g} \quad \bar{\sigma}_{rs2,arg-bitum} = 0,31 \text{ mg/g}$$

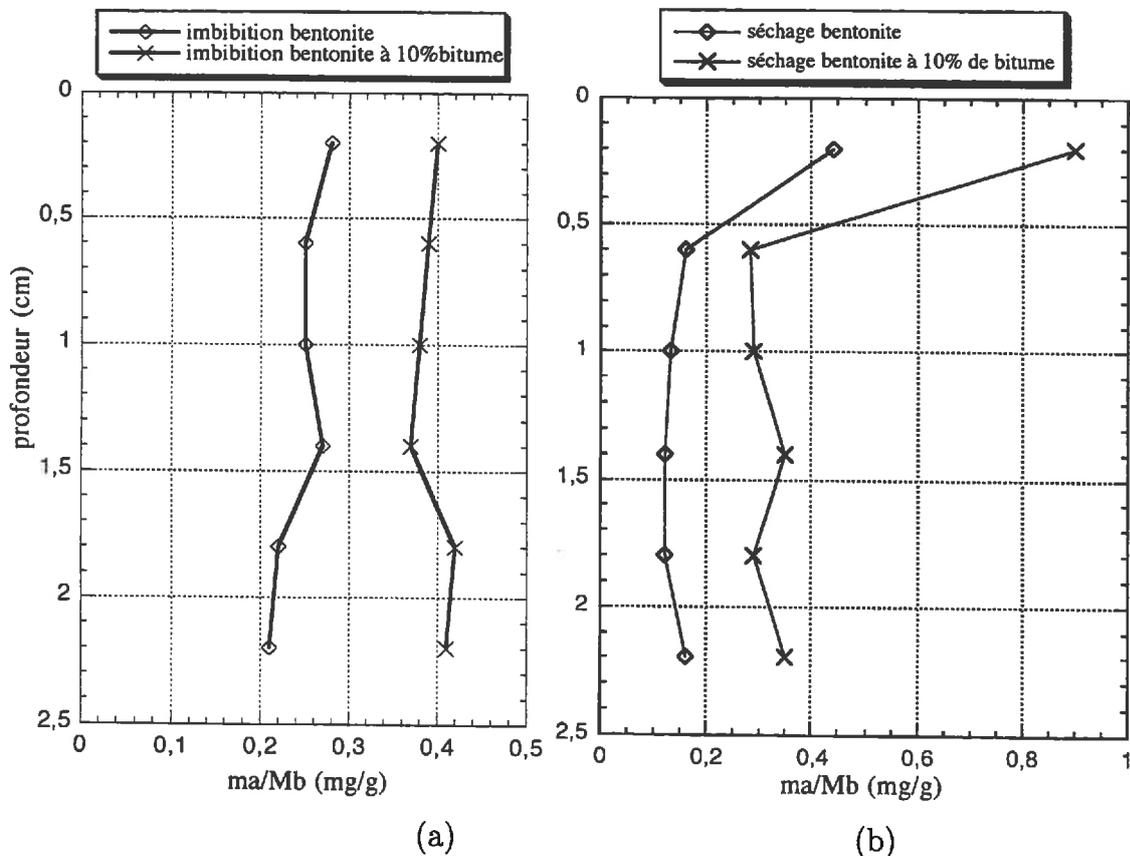


FIG. 6.14 - Comportement de la suspension d'argile à 10 % de bitume : (a) première imbibition, (b) premier séchage

### 6.5.2 Distribution des colloïdes dans le massif poreux au second cycle

Les résultats de distributions de l'argile dans le milieu poreux au bout de deux cycles sont illustrés par la figure 6.15. Une deuxième imbibition induit un enrichissement en colloïdes sur toute la profondeur du massif. Néanmoins, le phénomène de rétention que nous avons noté au premier cycle est plus important dans ce cas, car on remarque, sur la courbe 6.15, une augmentation de la concentration d'environ six fois plus importante que la concentration au premier séchage.

Au second séchage, il semble que le phénomène de migration de l'argile vers la surface de libre de l'échantillon se produit. Mais compte tenu de l'incertitude des mesures, nous n'avons pas pu chiffrer l'augmentation de la concentration dans la première tranche de l'empilement.

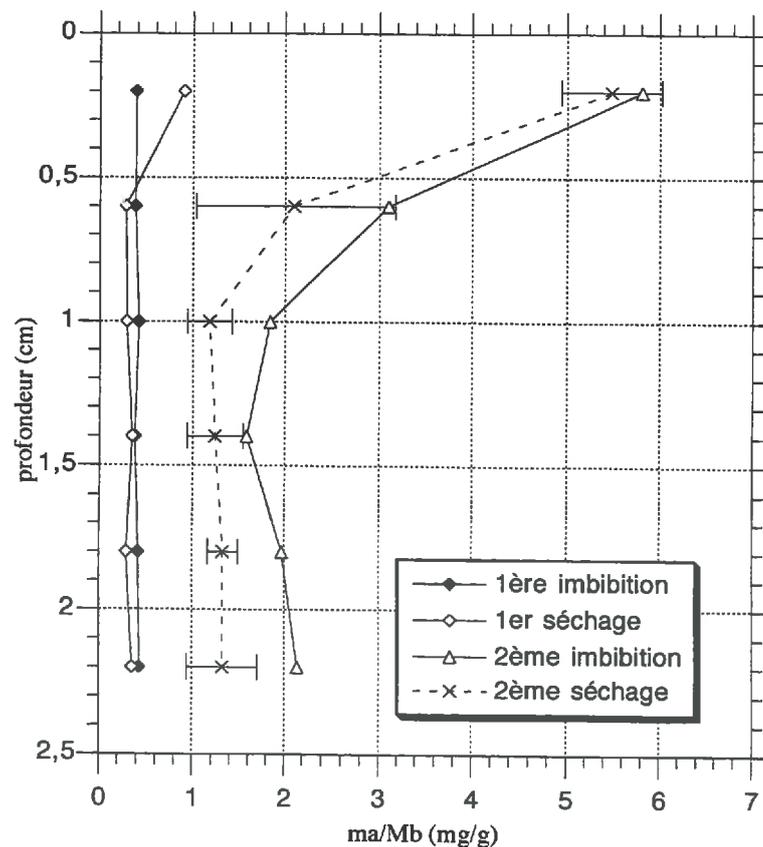


FIG. 6.15 - Comportement de la suspension d'argile à 10 % de bitume au second cycle

A l'état humide, on obtient pour la première tranche  $\sigma_{rh1,arg-bitume} = 5,81 \text{ mg/g}$  et pour la masse  $\bar{\sigma}_{rh2,arg-bitume} = 2,13 \text{ mg/g}$ .

A l'état sec, on trouve pour la première tranche  $\bar{\sigma}_{rs1,arg-bitum} = 5,59 \text{ mg/g}$  et dans la masse  $\bar{\sigma}_{rs2,arg-bitum} = 1,43 \text{ mg/g}$ .

## 6.6 Variation de la perméabilité

La courbe de variation de la perméabilité des échantillons imbibés par la suspension de colloïdes argile-bitume, est comparée aux courbes de variations de perméabilités des suspensions d'argile sans bitume à 1 g/l et à 2,5 g/l (6.16). On note en premier lieu la différence de viscosité de la suspension, qui est nettement marquée par une perméabilité initiale plus faible et donc une viscosité d'environ deux fois plus grande que celle de la suspension d'argile à 1 g/l.

Par ailleurs, les phénomènes de rétention des colloïdes argile-bitume dans le milieu poreux, contribuent d'une manière importante à la réduction de la perméabilité du fait d'une occupation plus grande de particules dans la porosité du milieu poreux. Il en résulte finalement un colmatage beaucoup plus rapide dans ce cas.

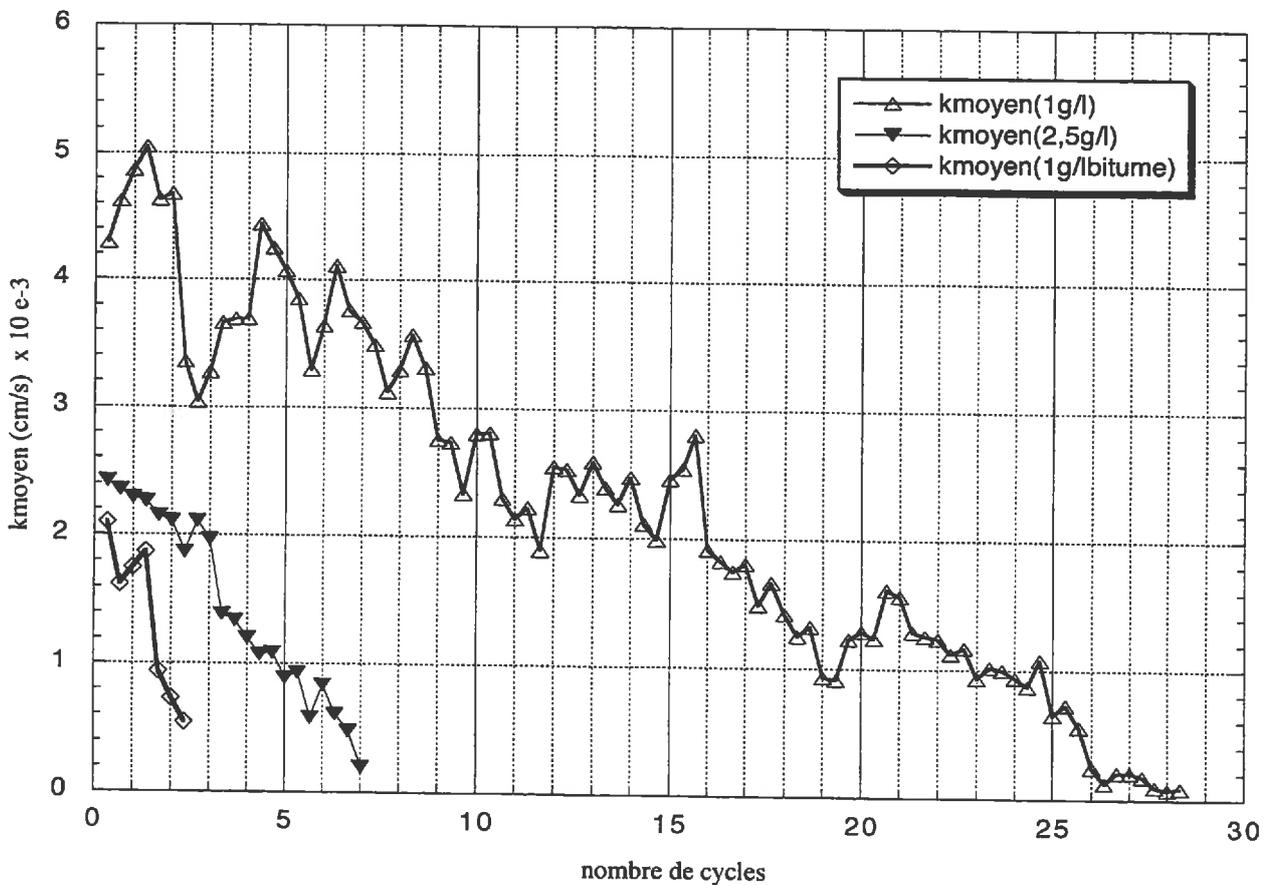


FIG. 6.16 - Comparaisons des variations de perméabilités

## 6.7 Morphologies des dépôts

Nous avons observé au microscope électronique à balayage la surface de séchage et la masse de l'échantillon. Nous distinguons les mêmes formes de dépôts que dans l'échantillon imbibé de suspension de bentonite brute :

- En surface de séchage (fig. 6.17, 6.18) : les billes du dessus de la croûte et les pores de surface sont recouverts d'une couche d'argile assez compacte. Il apparaît à plusieurs endroits des fissures résultant du retrait de l'eau. Par contre, à l'intérieur de la couche on observe des voiles et des ponts reliant les grains du milieu.

## 6.8 Conclusion

Grâce aux phénomènes d'interactions entre les colloïdes argileux et le bitume, nous avons obtenu des particules argile-bitume non hydrophobes qui ont les mêmes caractéristiques granulométriques que les particules d'argile pure. De plus, contrairement à certains travaux [15] [47], la surface spécifique des particules d'argile-bitume est plus faible que celle des particules sans bitume : la valeur au bleu est réduite d'environ 20 % après interaction avec 10 % en masse de bitume.

Les comportements de la suspension de bentonite-bitume, vis-à-vis de l'imbibition et du séchage, sont qualitativement les mêmes que ceux de la suspension de bentonite seule. Une fois de plus, nous constatons le phénomène de migration des colloïdes vers la surface de séchage après une distribution uniforme sur toute la profondeur du massif à l'état humide.

Néanmoins, dans le cas des colloïdes bentonite-bitume, il existe une rétention uniforme de particules sur la profondeur. Cette rétention contribue d'une manière importante à la réduction de la perméabilité. Il s'ensuit un colmatage plus rapide qui se manifeste après seulement deux cycles d'imbibition-séchage au lieu de 26 et 7 respectivement pour les suspensions d'argile à 1 et 2,5 g/l.

Le colmatage rapide de ces échantillons ne nous a pas permis de récupérer des plaques de billes-argile d'épaisseur suffisante en surface pour effectuer des essais mécaniques.

Les observations aux microscopes révèlent les mêmes types de morphologies de dépôts, à savoir un ciment argileux compact en surface de séchage et des ponts et voiles dans la masse. Néanmoins, le ciment de surface semble plus compact et mieux organisé, ce qui réduit la perméabilité d'une façon considérable au bout de deux cycles.

- Le dessus de la croûte (fig. 6.17)

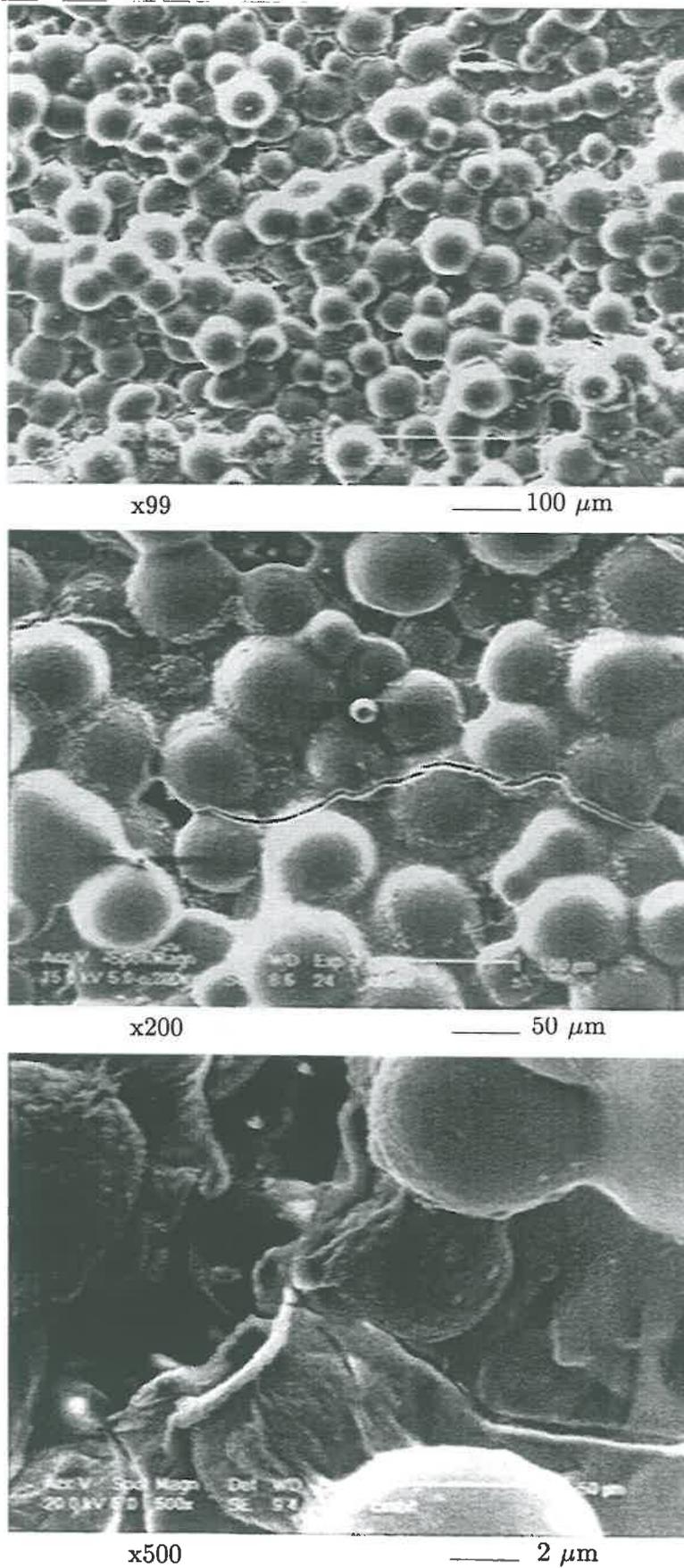
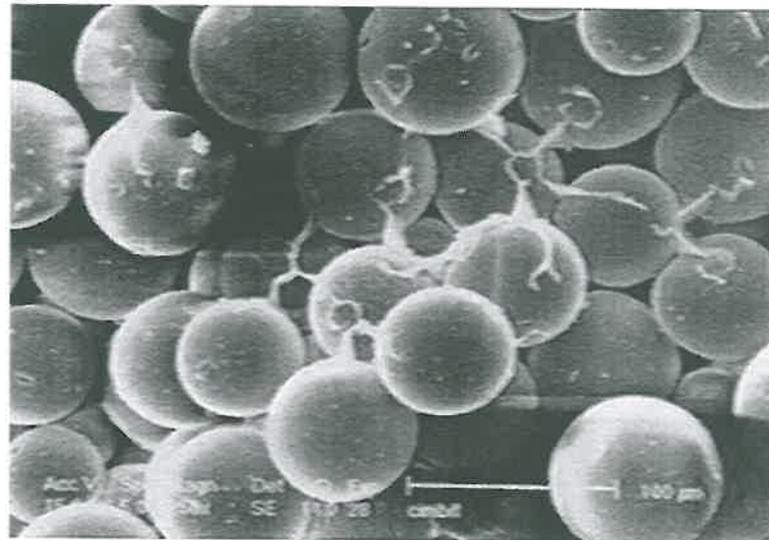


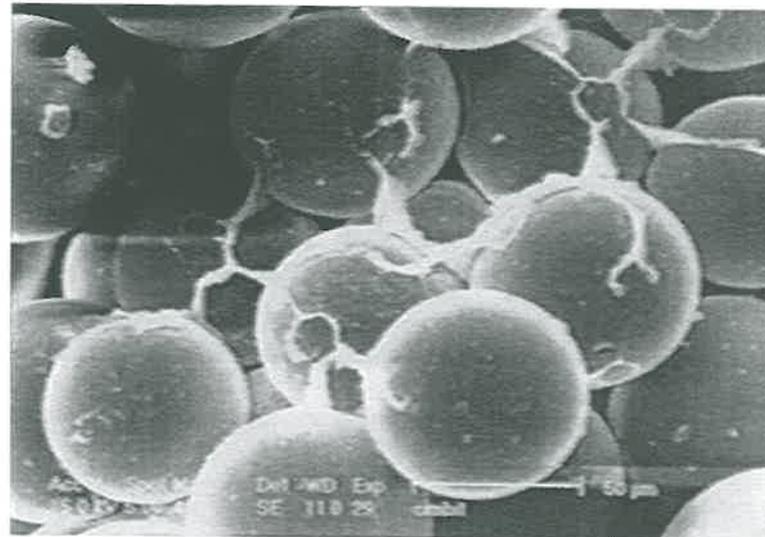
FIG. 6.17 - Recouvrement des billes par des couches d'argile après deux cycles d'imbibition-séchage de la suspension à 1g/l de bentonite à 10 % de bitume

- Le dessous de la croûte (fig. 6.18)



x250

40  $\mu$ m

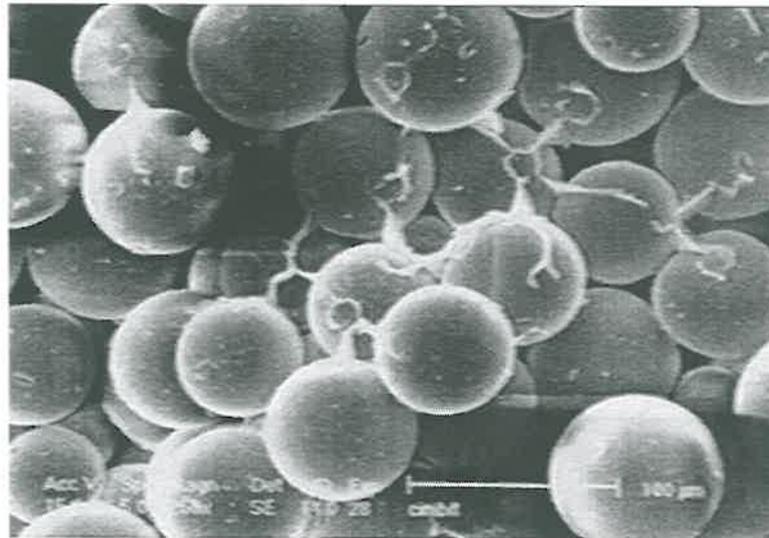


x400

25  $\mu$ m

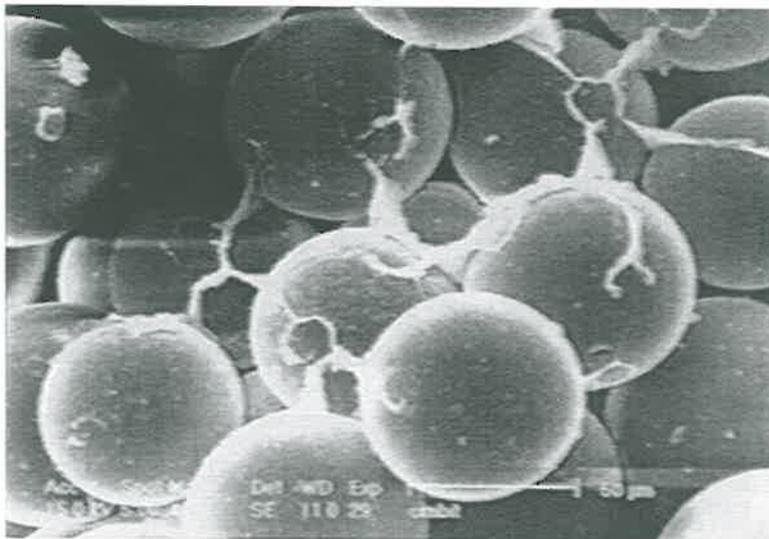
FIG. 6.18 - *Le dessous de la croûte après deux cycles d'imbibition-séchage de la suspension à 1g/l de bentonite à 10 % de bitume*

- Dans la masse (fig. 6.19) : comme le dessous de la croûte, on rencontre essentiellement des voiles et ponts.



x250

40 μm



x400

25 μm

FIG. 6.19 - Les dépôts dans la masse après deux cycles d'imbibition-séchage de la suspension à 1g/l de bentonite à 10 % de bitume



## Conclusion

L'objectif de ce travail était d'apporter un éclairage sur le phénomène de colmatage d'une chaussée poreuse. Nous avons donc cherché les mécanismes responsables de l'imperméabilisation et de la cohésion de ce type de structure par une modélisation physique du colmatant primaire. Vu la complexité du problème, nous avons restreint notre étude aux effets de circulation d'une suspension d'argile sous l'action de cycle imbibition-séchage dans un milieu granulaire modèle.

Sur la base de quelques hypothèses et observations, nous avons établi une méthodologie expérimentale prenant en compte à la fois les effets d'apports en particules colloïdales, provenant des effets éoliens et des altérations diverses, en suspension dans les eaux pluviales, et les effets climatiques, par une alternance de cycles d'imbibitions et de séchages. Deux types de suspensions ont été utilisés : une suspension de particules de bentonite sodique pure, et une suspension de particules de bentonite sodique imprégnées de bitume à la même concentration.

Nous avons envisagé, au début de ce travail, d'étudier aussi le cas d'une suspension de kaolinite colloïdale. Mais, il s'est avéré impossible d'obtenir, du fait de la décantation importante des particules, des teneurs mesurables de cette argile. D'autre part, ce phénomène se produit également au sein de l'empilement poreux, ce qui modifie complètement le mécanisme se produisant avec les particules stables comme la bentonite. Pour toutes ces raisons et par manque de temps, nous n'avons pas poursuivi les essais. Cependant, il nous semble intéressant d'examiner le cas des mélanges bentonite-kaolinite.

Le dispositif expérimental utilisé est simple. Néanmoins, la méthodologie adoptée demande beaucoup de précautions et de rigueur pour assurer un nombre suffisant d'échantillons pour des cycles avancés. Nous procédons par découpage, donc par destruction, de l'empilement. En outre, le séchage du massif poreux dure au moins trois jours pour chaque séchage. Par ailleurs, les autres types d'essais sont eux aussi relativement lents.

L'ensemble des résultats obtenus par cette étude peut être classé en deux catégories. Tandis que la première catégorie concerne directement les mécanismes de colmatage du milieu poreux modèle, les résultats de la seconde catégorie nous ont permis d'apporter des précisions sur le processus de séchage dans l'empilement de billes.

En ce qui concerne le colmatage de l'échantillon modèle, quatre aspects importants ont été étudiés : la distribution des colloïdes dans le massif, la perméabilité, la morphologie de dépôt, et la mesure des paramètres mécaniques.

Le découpage de l'échantillon en plusieurs tranches et le dosage de l'argile par la méthode au bleu de méthylène nous ont permis de mettre en évidence le comportement des suspensions de faible concentration de bentonite sodique brute et de bentonite sodique imprégnée de bitume dans l'empilement poreux.

Dans le cas de la suspension d'argile pure, nous n'avons pas observé de phénomène de rétention des particules colloïdales au sein de l'empilement au cours de l'écoulement. Au premier cycle, à l'état humide, la concentration en argile pure est identique le long de l'échantillon. Au séchage, on observe une migration et une concentration des colloïdes à la surface libre. La concentration en colloïdes dans le reste de l'échantillon est réduite d'environ un tiers, mais la distribution reste uniformément répartie sur toute la profondeur de l'empilement. A chaque cycle d'imbibition-séchage, les phénomènes d'enrichissement et de migration en surface de séchage se répètent. Cette répétition conduit à des échantillons hétérogènes composés de deux parties distinctes : la partie supérieure de l'échantillon proche de la surface de séchage, et le reste du massif poreux constituant la masse. La courbe reliant la concentration en argile dans l'échantillon (croûte et masse) au nombre de cycles de séchage est une droite. Ceci signifie que la quantité d'argile retenue à chaque cycle d'imbibition est la même.

Dans le cas des particules de bentonite imprégnées de bitume, le phénomène de distribution uniforme à l'état humide et de migration vers la surface libre se manifeste de la même façon que pour les particules de bentonite brute. Néanmoins, les différents dosages de colloïdes montrent que dans le cas des particules imprégnées de bitume, il existe un phénomène supplémentaire au cours de l'écoulement, qui est l'accrochage entre les particules argileuses et les grains du milieu poreux dû à la présence du bitume.

La perméabilité du milieu poreux est un paramètre révélateur de l'état de colmatage. Grâce aux mesures de débit et de charge, nous avons calculé la perméabilité moyenne de l'échantillon à plusieurs reprises au cours de chaque cycle d'imbibition. Nous avons ainsi montré que la chute de perméabilité se fait globalement de façon linéaire dans tous les cas abordés. De plus, nous avons constaté que l'évolution du colmatage dans le cas des particules bentonite-bitume est plus rapide que dans le cas de la bentonite brute à la même concentration. En effet, le colmatage se manifeste dans le premier cas au bout de seulement trois cycles, au lieu de vingt-six cycles dans le second cas. Cette différence de cinétique de colmatage est due à la différence de comportement des particules argileuses dans l'empilement. Tandis qu'au cours de l'écoulement les particules d'argile pure traversent le milieu poreux sans y adhérer, la bentonite-bitume interagit avec les grains du milieu. Cette rétention augmente la résistance du milieu à l'écoulement.

Par ailleurs, la vitesse de colmatage de l'échantillon dépend également de la concentration en colloïdes: l'imperméabilisation de l'échantillon poreux est atteinte au bout de six cycles pour une concentration de 2,5 g/l au lieu de vingt-six à la concentration de 1 g/l.

Les formes de dépôts au sein de l'empilement après séchage de la suspension ont été observées grâce au microscopique électronique. Nous avons pu distinguer deux types de structures argileuses entre les grains du milieu poreux: le "ciment" et les "voiles et ponts". Nous avons appelé "ciment" l'amas argileux résultant de la superposition, au cours de la répétition des cycles imbibition-séchage, des membranes planes, perpendiculaires à la direction de l'évaporation et situées dans les pores formés par les grains. Nous désignons par "voiles et ponts" les structures argileuses créées aux points de contacts entre les grains.

Les différentes photographies montrent que le ciment argileux occupe essentiellement la porosité de la partie supérieure de la croûte de billes, tandis que les voiles et les ponts se situent dans la partie inférieure de la croûte et dans la masse. C'est cette différence de morphologie des dépôts qui fait que dans la croûte nous avons obtenu un solide composé de billes reliées par de l'argile qui assure la fonction de matrice d'où le nom "ciment argileux". Dans la masse, bien qu'il subsiste quelques agglomérats de billes, la majorité de l'échantillon est très friable et pulvérulent. Ainsi, il nous semble que le premier type de dépôt (ciment) joue un rôle aussi important dans le colmatage et l'imperméabilisation de l'échantillon que dans sa cohésion. En revanche, les voiles et les ponts participent essentiellement à lier faiblement les grains du milieu sans pour autant affecter, quand ils ne se situent pas dans les passages du liquide, d'une manière importante la perméabilité de l'ensemble de l'échantillon.

Pour caractériser mécaniquement la partie solide de l'empilement (la croûte), nous avons été amené à mettre au point un essai adapté à la nature et à la taille des échantillons testés. Le dispositif expérimental est simple et donne des résultats reproductibles.

Les courbes contrainte-déplacement obtenues sur des croûtes de billes montrent d'une part que l'ensemble billes-argile a un comportement élastique fragile et d'autre part que la valeur des paramètres mécaniques (module d'élasticité, contrainte à la rupture) varie avec la concentration en argile de l'échantillon.

La valeur du module d'élasticité peut atteindre, pour les croûtes de billes, la valeur de 2 GPa. Cette valeur est du même ordre de grandeur que le module d'élasticité en traction obtenue sur des films minces de bentonite, qui est égale à 6 GPa. Ainsi, la résistance de la croûte est essentiellement gérée par les liens d'argile.

Dans le cas des échantillons imbibés de suspension de bentonite-bitume, nous n'avons pas réussi à obtenir des croûtes d'épaisseur suffisante pour effectuer des essais mécaniques.

Dans la seconde catégorie de résultats, nous avons classé toutes les observations concernant le séchage de la suspension dans l'empilement modèle.

Le processus de séchage de la suspension au sein de l'empilement est assez complexe. Néanmoins, grâce à l'étude des distributions de colloïdes à l'imbibition et au séchage, et à travers les diverses expériences réalisées, nous avons pu suivre les différentes étapes.

La distribution de l'argile après séchage nous a permis de montrer que le processus de séchage dans l'empilement se fait en deux phases : une première phase où le liquide se déplace de façon continue du bas de l'échantillon vers la surface de séchage. L'air pénètre dans le milieu. Ceci permet donc l'ascension des colloïdes vers l'interface air-solide et la concentration des particules sur quelques rangées de billes de surface après le départ du liquide. Durant la deuxième phase, la teneur en humidité devient insuffisante pour assurer la continuité du liquide, et les ménisques disjoints

apparaissent au sein de l'échantillon. Ainsi, la suspension est piégée entre les grains jusqu'au séchage.

Nous avons vérifié, grâce au banc gamma, que les étapes décrites ci-dessus sont aussi valables dans le cas du séchage d'une eau pure. Il semble donc que la concentration des colloïdes en surface de séchage est un phénomène inhérent aux conditions aux limites de notre échantillon, et n'est donc pas liée à la présence des particules argileuses.

Par ailleurs, le séchage d'un empilement monocouche de billes de verres macroscopiques dans des boîtes de Pétri nous a permis de démontrer que la phase gazeuse passe préférentiellement par les pores de grandes dimensions pour atteindre le fond de l'échantillon, elle "contourne" ensuite les grains pour envahir les pores de faibles dimensions. Par la suite, il se crée deux types de structures argileuses : des voiles plans perpendiculaires à la direction d'évaporation dans les pores de faibles dimensions et des voiles circulaires aux points de contacts plan-sphère (voire sphère-sphère). Ces deux types de structures sont tout à fait comparables aux structures observées dans l'empilement de billes microscopiques. De plus, le séchage de la suspension de bentonite dans un dièdre donne aussi des structures de voiles symétriques s'appuyant sur chacun des plans formant le dièdre. Les observations des instabilités, issues du séchage dans le dièdre, ont fait ensuite l'objet de développements théoriques par Ph. Coussot. L'utilisation d'une approche simplifiée de l'instabilité de Saffman-Taylor avec l'hypothèse d'un séchage en masse, permet de calculer avec une bonne précision la distance à laquelle l'instabilité apparaît. Cependant, dans l'état d'avancement actuel des travaux, il est difficile d'expliquer la forme des digitations qui se créent dans le dièdre au cours du séchage de la suspension.

Revenons, maintenant, sur la question principale que nous nous sommes posée au cours de cette thèse : le colmatant constitué essentiellement d'un sable grossier et d'une très faible teneur en argile, est-il capable d'imperméabiliser totalement la chaussée poreuse et de montrer autant de résistance à l'extraction au cours des opérations de décolmatage ?

Notre étude expérimentale démontre que grâce aux cycles imbibition-séchage de la suspension de bentonite sodique, non seulement le colmatage par imperméabilisation de l'échantillon modèle est atteint, mais qu'en plus nous obtenons un milieu consolidé à partir d'un milieu initialement pulvérulent. Les paramètres mécaniques de la partie consolidée de l'empilement, sont relativement importants compte tenu des teneurs en argile en présence dans l'échantillon. Néanmoins, il reste difficile de relier ces résultats au cas réel d'un colmatant de chaussée drainante.

Il est à noter que le problème de colmatage sur route reste beaucoup plus complexe que la situation expérimentale idéale à laquelle nous nous sommes restreint, mais nous espérons qu'à travers d'autres études, le colmatage par la suspension argile-bitume sera approfondi. En effet, le colmatage, dans ce cas, est plus rapide et de plus, il existe un phénomène de rétention irréversible entre les grains et les particules. Il serait aussi intéressant d'étudier l'action du trafic routier pour l'aspect colmatage/décolmatage des voies de chaussée fortement circulées. Une fois tous ces aspects étudiés, on peut espérer résoudre la question du décolmatage de façon efficace sur route. Actuellement, les quelques tentatives que nous avons menées sur les croûtes de billes, s'avèrent non concluantes : nous avons remarqué que la saturation de la partie solide de l'échantillon provoque son effondrement. Aussi, nous avons mené une série d'expérience d'adsorption d'eau à différents taux d'humidité dans des bocaux contenant diverses solutions salines. Il semble donc, que même à 90 % d'humidité relative, l'échantillon, conservé dans le bocal depuis environ un an, reste solide. En revanche, une saturation en eau par succion provoque l'affaissement quasi instantané de la croûte. Ceci va à l'encontre des observations de décolmatage sur terrain, car même en appliquant l'eau sous pression, on n'arrive pas à retirer complètement le sédiment colmatant.

Reste à signaler que les résultats de cette étude peuvent être extrapolés à d'autres applications. Nous pensons, notamment, aux phénomènes physico-chimiques dus au transport de particules colloïdales dans un milieu granulaire, au domaine de la géologie et des sols, pour ce qui concerne les formations des croûtes dans les sols argileux et le colmatage des drains, et enfin, au séchage industriel des suspensions colloïdales.



## Bibliographie

- [1] Allain C. et Limat L. – Regular patterns of cracks formed by directional drying of a colloïdal suspension. *Phys. Rev. Lett.*, vol. 74, 1995, pp. 2981–2984.
- [2] Anelli-Monti O. – Importances des revêtements modernes et aspects économiques déterminants pour les sociétés concessionnaires d'autoroutes. *R.G.R.A.*, no675, 1990, p. 55.
- [3] Bear J. – *Dynamics of fluids in porous media*. – American Elsevier Publishing, 1972.
- [4] Bochart J.A. et O'Melia C.R. – Sand filtration and algal suspensions. *Journal of American Water Works Association.*, Decembre 1961, pp. 1493–1502.
- [5] Bodenheimer W. et Heller L. – Sorption of methylene blue by montmorillonite saturated with different cation. *Israel Journal of Chemistry*, vol. 6, 1968, pp. 307–314.
- [6] Bonnot J. – Enrobés ouverts drainants. *Bull. de Liai. des Ponts et Chaussées (BLPC)*, no 144, 1986, p. 83.
- [7] Bonnot J. – *Construction et entretien : Question II - France*. 19<sup>ème</sup> Congrès Mondial de la Route. – Marrakech, Maroc, 22-28 Septembre 1991.
- [8] Borgotti J.C. – Valeur au bleu sur faibles quantités d'argiles. – LCPC-UMR 113, 1992. Note traceur numéro 255.
- [9] Brewer R. et Haldane A. D. – Preliminary experiments in the development of clay orientation in soils. *Soil Science*, no84, 1957, pp. 301–309.
- [10] Brion Y. – *Structure colloïdale des bitumes. Relation entre composition, structure et comportement*. – Rapport technique, L.P.C., série Physique et Chimie PC4, 1984.
- [11] Brosseaud Y. – Etat des connaissances sur le décolmatage des revêtement poreux. – Journées Nationales "Enrobés Drainants", 16 décembre 1993.

- [12] Brosseaud Y. – L'entretien des enrobés drainants: quelles sont les techniques disponibles? – Journées Nationales "Enrobés Drainants", 16 décembre 1993.
- [13] Brown J.R. – *Previous bitumen-macadam surfacings laid to reduce splash and spray at stonebridge, Warwickshire.* – Rapport technique, TRR1 report n° LR 563, Crowthorne, p 23, 1973.
- [14] Brule B. et Zumer M. – *Application des C.L.H.P. à la détermination rapide de la composition générique des bitumes.* – Rapport technique, L.P.C., série Physique et Chimie PC-2, février 1984.
- [15] Burford J. R., Desphande T. L., Greenland J. et Quirk J. P. – Influence of organic materials on the determination of the specific surface. *Areas of Soils. Journal of Soil Science*, vol. 15, n° 2, 1964.
- [16] Chassin P. – Influence des substances humiques sur les propriétés des argiles. *Sciences du sol. Bulletin de l'A.F.E.S.*, no2, 1976, pp. 115–120.
- [17] Choo C. U. et Tien C. – Analysis of the transient behavior of deep-bed filtration. *Journal of Colloid and Intr. Science*, vol. 169, 1995, pp. 13–33.
- [18] Colandini V. – Effets des structures réservoirs à revêtement poreux sur les eaux pluviales: qualité des eaux et devenir des métaux lourds. – Rapport interne L.C.P.C.
- [19] Colandini V. – *Effets des structures réservoirs à revêtement poreux sur les eaux pluviales: qualité des eaux et devenir des métaux lourds.* – Thèse de Doctorat, Université de Pau et des pays de l'Adour, 1997.
- [20] Combelles F. – Les enrobés drainants. *R.G.R.A.*, no spécial printemps 91, 1991, p. 52.
- [21] Costet J. et Sanglerat G. – *Cours pratique de mécanique des sols: Plasticité et calcul des tassements.* – Dunod, troisième édition.
- [22] Coussot Ph., Gauthier C. et Nadji D. – Critère d'instabilité du front de retrait lors du séchage d'une suspension d'argile dans un dièdre. *Comptes-Rendus de l'Académie des Sciences*, vol. 326, n° série II b, 1998, pp. 919–926.
- [23] Cuisset O. – *Propriétés électrocinétiques des particules argileuses. Application de la méthode électrophorétique aux problèmes d'environnement et d'identification des sols.* – Rapport technique n° 96, L.P.C., 1980.

- \* [24] De Cayeux M.-D. – *Contribution à l'étude de la migration et de la rétention de particules minérales dans un milieu poreux*. – Rapport technique, L.P.C., série Physique et Chimie PC-8, décembre 1990.
- [25] Decoene Y. – Enrobés bitumineux perméables, expériences récentes belges. *Tech. Rout.*, vol. 28, n° 2, 1983, p. 20.
- [26] Delachambre Y. – *Contribution à l'étude de l'écoulement d'une suspension à travers un milieu poreux et du mécanisme de la filtration*. – Thèse de Doctorat, Faculté des Sciences de Nancy, France, 1966.
- [27] Dijkermann J. C., Cline M. G. et Olson G. W. – Proprieties and genesis of textural subsoil lamellae. *Soil Science*, vol. 104, n° 1, 1967, pp. 7–16.
- [28] Dron R., Bestougef M. et Voinovitch I. A. – *Contribution à l'étude des états structuraux des bitumes*. – Rapport technique n° 75, L.P.C., mars 1978.
- [29] Dullien F.A.L. – *Porous media. Fluid transfert and pore structure*. – Academic Press, INC, 1979.
- [30] Dyal R.S. et Hendricks S.B. – Total surface of clays in polar liquids as a characteristic index. *Soil Science*, vol. 69, n° 6, 1950.
- [31] Edwards D. M. et Monke E. J. – Electrokinetic studies of slow and filtration process. *Journal of American Water Works Association*, Octobre 1967, pp. 1310–1319.
- [32] Fairbain P.E. et Robertson H.S. – Liquid limit and dye adsorption. vol. 3, 1957, pp. 124– 126.
- [33] Farrar D. M. – The use of vapor-pressure and moisture content measurements to deduce the internal and external surface areas of soil particules. *Journal of Soil Science*, vol. 14, 1963.
- [34] Faure B., Verhee F. et Lucas J. – Techniques nouvelles de couches de roulements, les enrobés drainants. *BLPC hors série, thématique: bitumes et enrobés bitumineux*, fevrier 1992, p. 85.
- [35] Frerejean G. et de Souza B. – *Microscopie électronique environnementale et spectrométrie de masse à ions secondaires*. – Rapport technique, Institut Francilien d'ingénierie, Avril-Mai 1995.
- [36] Frouin L. – *Etude expérimentale des interactions surface minérale-bitume. Cas particulier des argiles*. – Rapport technique n° 154, L.P.C., juin 1989.

- [37] Gauthier C., Nadji D. et Coussot Ph. – Instabilité du front de retrait lors du séchage d'une suspension d'argile dans un empilement granulaire. *Compte-Rendus de l'Académie des Sciences*, vol. 326, n° série II b, 1998, pp. 767–774.
- [38] Gerardu J.J.A., Gorkum F. Van et der Plas J.J. Van. – *R.G.R.A.*, no 587, 1982, p. 77.
- [39] Gerba C.P. et Goyal S. M. – Pathogen removal from wastewater during groundwater recharge. *Artificial Recharge of Ground-water*. Edité par Asano, Butterwort, Stoneham, Mass, 1985, pp. 283–317.
- X [40] Ghidaglia C. – *Filtration en profondeur de particules*. – Thèse de Doctorat, Université de Paris VI, 1994.
- [41] Ghoch G. – Mechanism of rapid sand filtration. *Water Engineering*, 1958, pp. 147–153.
- [42] Ghoch G. – Media characteristics in water filtration. *Proc. Am. Soc. Civil. Eng.*, 1958, pp. 1–25.
- [43] Gohr Pingeiro I., Schmitz P. et Houi D. – Mécanisme d'aggrégation à l'échelle du pore en filtration en masse. – *Interfiltra*, Novembre 1994.
- [44] Goldenberg L. C., Hutcheon I., Wardlaw N. et Melloul J. – Formation of borders in porous media during evaporation and their influence on permeability. *Journal of Hydrology*, vol. 138, 1992, pp. 53–75. – Elsevier Science Publ. B.V., Amsterdam.
- X [45] Goldenberg L. C., Hutcheon I., Wardlaw N. et Melloul J. – Rearrangement of fine particles in porous media causing reduction of permeability and formation of preferred pathways of flow: experimental and a conceptual model. *Transport in Porous Media*, vol. 13, 1993, pp. 221–237.
- [46] Goldenberg L.C., Magaritz M., Amiel A.J. et Mandel S. – Changes in hydraulic conductivity of laboratory sand-clay mixtures caused by a seawater-freshwater interface. *Journal of Hydrology*, vol. 70, 1984, pp. 329–336.
- [47] Guyot J. – Mesures des surfaces spécifiques par adsorption. – *Ann. Agron.*, 1969.
- [48] Hang P. T. et Brindley G. W. – Methylene blue absorption by clay minerals. Determination of surface areas and cation exchange capacities. *Clays and Clay Minerals*, vol. 18, 1970, pp. 203–212.
- [49] Heertjes P. M. et Lerk C. F. – The functioning of deep bed filtration. *Trans. Inst. Chem. Eng.*, vol. 45, 1967, pp. T129–T145.

- [50] Henry J. D., Lawler L. F. et Kuo C. H. A. – *A.I.Che. Journal*, vol. 23, 1977, p. 851.
- [51] Herzig J.-P. – *Etude de l'écoulement de suspensions à travers les milieux poreux*. – Thèse de Doctorat, Faculté des Sciences de Nancy, 1970.
- [52] Herzig J.P., D.M. Leclerc et Le Goff P. – Flow of suspension through porous media. Application to deep filtration. *Industrial and Engineering Chemistry*, vol. 62, n° 5, may 1970, pp. 9–35.
- [53] Holdzapffel T. – *Les minéraux argileux. Préparation, Analyse diffractométrique et détermination*. – Rapport technique n° 12, Société Géologique du Nord, 1985.
- [54] Israelachvili J. – *Intermolecular and surface forces*. – Academic Press, 1992.
- [55] Ives K. J. – Research on deep filters. *Trans. Inst. Chem. Eng.*, vol. 43, 1965, pp. 238–247.
- [56] Ives K. J. – Deep filters. *Filtr. Separ.*, mars-avril 1967, pp. 125–135.
- [57] Ives K. J. et Gregory J. – Surface forces in filtration. *Proc. Soc. Water Treat. Exam.*, vol. 15, n° 2, 1966, pp. 93–116.
- [58] Johnson C.E. – Methylene blue adsorption and surface area measurements. pp. 7–12.
- [59] Jordan R. H. – Electrophoretic studies of filtration. *Journal of American Water Works Association*, 1963, pp. 771–782.
- [60] Keonigs F.F.R. – *Mechanical stability of clay as influenced by the moisture conditions and some others factors*. – VLO, Wageningen, 1961.
- [61] Khilar K. C., Folger H. S. et Ahluwalia J. S. – *Soc. Pet. Eng. Journal*, vol. 23, n° 55, 1983.
- [62] Koester H. – Porous wearing courses: observation under traffic. *R.G.R.A.*, no631, 1985, p. 512. – 3<sup>e</sup>ème Symposium Eurobitume, La Haye.
- [63] Koots J.A. et Speight J.G. – *Fuel*, vol. 54, 1975, p. 179.
- [64] Lamrous O., Houi D., Zarcone C. et Pradere J. – Magnetic resonance imaging, application to study of porous media. *Revue Phys. Appl.*, no 24, 1989, pp. 607–612.
- [65] Le Doussal H. et Martin D. – Analyse granulométrique : étude comparative des résultats obtenus par l'hydromètre de Bouyoucos et le Sédigraphe 5000. *L'industrie céramique*, no674, juin 1974.

- [66] Lide D. R. (édité par). – *CRC Handbook of chemistry and physics*. – 1993-1994 édition.
- [67] Lietard O. – *Contribution à l'étude des propriétés physico-chimiques, cristallographiques et morphologiques des kaolins*. – Thèse de Doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine, 1977.
- [68] Macey H.H. – Clay-water relationship and the internal mechanism of drying. *Trans. Brit. Ceram. Soc.*, vol. 41, 1942, pp. 73–120.
- [69] Malsang D. – *Méthode de dosage d'une argile par le bleu de méthylène*. – Rapport technique, UMR 113, Avril-Juin 1996.
- [70] Maroudas A. – *Clarification of suspensions: a study of particule deposition in granular media*. – Thèse de Doctorat, University of London, 1961.
- [71] Maroudas A. et Einsenklam P. – Clarification of suspensions: a study of particule deposition in granular media. Part II. *Chem. Eng. Sci.*, vol. 20, 1965, pp. 875–888.
- \* [72] McDowell-Boyer L.M., Hunt J.R. et Sitar N. – Particle transport trough porous media. *Water Resour. Res.*, vol. 22, n° 13, 1986, pp. 1901–1921.
- [73] Meunier Y. et Delanne Y. – Propriétés acoustiques des chaussées. *RGRA*, no705, 1992, pp. 53–58.
- [74] Michaut J.P. – Une application routière: le colflex de colas. *R.G.R.A.*, no657, 1988, p. 63.
- [75] Mintz D. M., Paskutskaya L. N. et Chernova Z. U. – Mechanism of the filtration process in high speed water filters. *Zh. Prikl. Khim.*, vol. 40, 1967, pp. 1695–1700.
- [76] Mintz D.M. – Modern theory of filtration. *Int. Water Supply Ass.*, 1966.
- [77] Musy A. et Soutter M. – *Physique du sols*. – Presses polytechniques et universitaires romandes, 1991.
- [78] Nadeau J. P. et Puiggali J. R. – *Séchage des processus physiques aux procédés industriels*. – Technique et documentation- Lavoisier, 1995.
- [79] Nadji D., Berthaud Y. et Gauthier C. – Caractéristiques mécaniques et hydrodynamiques d'un milieu modèle colmaté par une suspension argileuse. *13 ème Congrès Français de Mécanique*. Poitiers, France, pp. 417–420. – A.U.M. 1-5 septembre 1997.

- [80] Nadji D., Berthaud Y. et Gauthier C. – Rupture d'un milieu granulaire consolidé par des ponts d'argile. *Journées MECAMAT*. Bordeaux, France. – 15-16 mai 1997.
- [81] Nellenstein F.J. – *Chem. Weekbl.*, 1924, pp. 21–42.
- [82] Nevins M.J. et Weintritt D.J. – Determination of cation exchange capacity by methylene blue adsorption. *American Ceramics Bulletin*, vol. 46, n° 6, 1967.
- [83] Pariat J.-C. – Suivi du décolmatage d'enrobés drainants en bande d'arrêt d'urgence et en voie lente d'autoroute. *Bulletin de Liaison des Ponts et Chaussées*, mai-juin 1992, p. 3.
- [84] Pariat J.-C., Carrez B., Contant F., Bernard M., Gauthier C., Henry H., Laganier R., Masson N. et Terriere J. – Enrobés drainants : suivi de l'effet du décolmatage dans le temps. *R.G.R.A.*, no729, mai 1995, p. 73.
- [85] Parisse F., Allain C. et Limat L. – Ecllosion d'une fleur de verre ou figures de fractures formées par séchage. *Bulletin de la S.F.P.*, vol. 103, 1996, pp. 24–27.
- [86] Payatakes A. C., Park H. Y. et Petrie J. – A visual study of particle deposition and reentrainment during depth filtration of hydrosols with a polyelectrolyte. *Chemical Engineering Science*, vol. 36, 1981, pp. 1319–1335.
- [87] Pendse H., Tien C., Rajagopalan R. et Turian R. M. – *m. A.I.Ch.E.*, vol. 24, n° 473, 1978.
- [88] Pheps G.W. et Harris D.L. – Specific surface and dry strength by methylene blue adsorption. *Am. Ceram. Soc. Bull.*, vol. 47, 1967, pp. 1146–1150.
- [89] Pichon A. – *Colmatage de milieux poreux en génie civil: cas des enrobés drainant de l'autoroute du Nord*. – Thèse de Doctorat, Université Paris VI, 1993.
- [90] Raimbault G. – Nouvelles techniques en assainissement pluvial urbain.
- [91] Rawson R.A.G. – A rapid method for determining the surface area of aluminosilicates from the adsorption dynamics of ethylene glycol vapor. *Journal of Soil Science*, vol. 20, n° 2, 1969.
- [92] Riddick T. – Control of colloïd stability through zeta potentiel, 1968.
- [93] Rivière A. – *Méthodes granulométriques. Techniques et interprétations*.

- [94] Runacher J.M. – *La structure des argiles. Application à l'étude de leurs propriétés macroscopiques.* – Thèse de Doctorat, Thèse Faculté des Sciences de Grenoble, 1970.
- [95] Saehr D., Le Derd R. et Hoffner D. – Etude de l'adsorption du cations bleu de méthylène par une vermiculite. *Compte Rendu de l'Académie des Sciences*, no3, juillet 1978, pp. 105–107. – T.287.
- [96] Sainton A. – *Entretiens à la direction technique de la société Beugnet et au LCPC.* – Rapport technique, Société Beugnet, 1990-1991-1992.
- [97] Sakthivadivel R. – *Theory and mechanisms of the filtration of noncolloidal fines through a porous medium.* – Rapport technique, Univ. of California, Berkeley, Tech. Rep. HEL 15-5, Hydraulic Eng. Lab., 1966.
- [98] Sakthivadivel R. – *Clogging of a granular porous medium by sediment.* – Rapport technique, Berkeley, University of California, H.E.L. 15-7, Hydraulic Engineering Laboratory, 1969.
- [99] Scherer G.W. – Aging and drying of gels. *Jour. Non-Cryst. Solids*, vol. 100, 1988, pp. 77–92.
- [100] Serfass J.P. – Enrobés drainants. *R.G.R.A.*, no 668, 1989, p. 46.
- [101] S.E.T.R.A. – Observatoire des techniques de chaussées. Enrobés drainants. – Note d'information "Chaussées dépendances 100", juin 1997.
- [102] Smith C.V. – Electrokinetic phenomena in particulate removal from water by rapid sand clarification. *Journal of N. Engl. Water Works Association*, vol. 81, 1967, pp. 170–212.
- [103] Smith C.V. – *Electrokinetic phenomena in particulate removal from water by rapid sand clarification.* – Thèse de Doctorat, University Johns Hopkins, 1968.
- [104] Soo H. et Radke C.J. – The flow mechanism of dilute, stable emulsion in porous media. *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, vol. 3, n° 23, 1984, pp. 342–347.
- [105] Stein P. C. – *A study of the theory of rapid filtration of water through sand.* – Thèse de Doctorat, Massachusetts Institute of Technology, 1940.
- [106] Tan K. H. – Humic acid complex formation and intermicellar adsorption by bentonite. Mexico, pp. 286–287. – 1975.
- [107] Tien C. – *Granular filtration of aerosols and hydrodols.* – Butterworths, Boston, 1989.

- [108] Tien C. et Payatakes A.C. – Advances in deep bed. *A.i.che. Journal*, vol. 25, n° 5, pp. 737–758.
- [109] Tourenq C. et Tran N. L. – Mise en évidence des argiles par l'essai au bleu de méthylène. application aux sols, roches, et granulats. *Bulletin de Liaison Laboratoires des Ponts et chaussées*, no159, 1989.
- [110] Tran N. L. – Un nouvel essai d'identification des sols: essai au bleu de méthylène. *Bulletin de Liaison Laboratoires des Ponts et chaussées*, no88, 1977, pp. 136–137.
- [111] Vaillant D. et Durrieu F. – *Composés polaires des produits pétroliers et des bitumes*. – Rapport technique, L.P.C., mars 1984. FAER: 1 63 10 3- 1 63 10 4.
- [112] Vidalie J.-F. – *Relations entre les propriétés physico-chimiques et les caractéristiques mécaniques des sols compressibles*. – Rapport technique n° 65, L.P.C, janvier 1977.
- [113] Vie P. – Etude du séchage dans des empilements modèles composés de deux couches de matériaux. – 1997. Rapport interne de l'U.M.R. 113.
- [114] Waagberg L.G. – Research and experience with previous macadam in Sweden. *Asphalt Technology*, no 36, 1985, p. 9.
- [115] Zabat M. – *Microstructure et propriétés mécaniques de films solides de particules colloïdales (smectites)*. – Thèse de Doctorat, Université d'Orléans, 1996.



# Annexe A

## Les chaussées poreuses

### A.1 Introduction

Il y a quelques décennies, les chaussées devaient essentiellement assurer d'une manière durable et sûre la circulation des véhicules. Aujourd'hui, elles doivent aussi satisfaire d'autres fonctions : confort et sécurité sur autoroute et réduction des nuisances sonores dues à la circulation dans les milieux urbains pour les riverains. Aussi, des techniques innovantes et des recherches de nouveaux matériaux ont tenté de satisfaire ces besoins nouvellement exprimés. On remarque dans le domaine routier l'apparition de la technique des enrobés drainants.

### A.2 Structures poreuses routières

Les enrobés drainants sont des structures dont la porosité est supérieure à 20 %. Ils se présentent sous la forme d'un squelette granulaire ayant à chaque contact granulat-granat un pont en bitume. Pour mieux fixer les idées, on peut imaginer une chaussée parfaitement compacte (dense) à laquelle on aurait enlevé une grande partie du mortier (suppression des fractions granulométriques intermédiaires) qui assure la liaison entre les gros cailloux. On obtient ainsi un empilement de grains liés par du bitume, séparés par des vides importants et communicants qui permettent l'infiltration des eaux pluviales.

Les principaux objectifs de l'application de ces structures routières drainantes sont :

- la sécurité : le drainage des eaux pluviales permet l'amélioration de la sécurité routière par la suppression des projections d'eau, de l'aquaplanage et de la réflexion des phares la nuit ;
- la réduction du bruit : la nécessité de réduire le bruit de roulement dû au contact pneumatiques-chaussée découle d'un développement important du trafic

routier accompagné d'un accroissement sensible des vitesses moyennes de circulation ;

- la protection de l'environnement : l'accroissement continu des zones urbaines modifie l'interface entre l'atmosphère et les terrains naturels à cause de l'imperméabilisation des sols. Il en résulte une réduction des infiltrations d'eaux profondes qui peut entraîner un rabattement des nappes souterraines [90]. Cette imperméabilisation engendre aussi des nuisances au niveau des villes en augmentant les risques d'inondations fréquentes (cf. A.4).

Selon le champ d'application désiré (fig. A.1), on peut distinguer deux catégories de structures poreuses :

1. les enrobés drainants minces pour les aspects sécurité et réduction du bruit ;
2. les chaussées poreuses urbaines qui ont l'avantage de la fonction réservoirs (drainage et stockage temporaire des eaux) et une grande capacité à diminuer le niveau sonore du bruit de roulement.

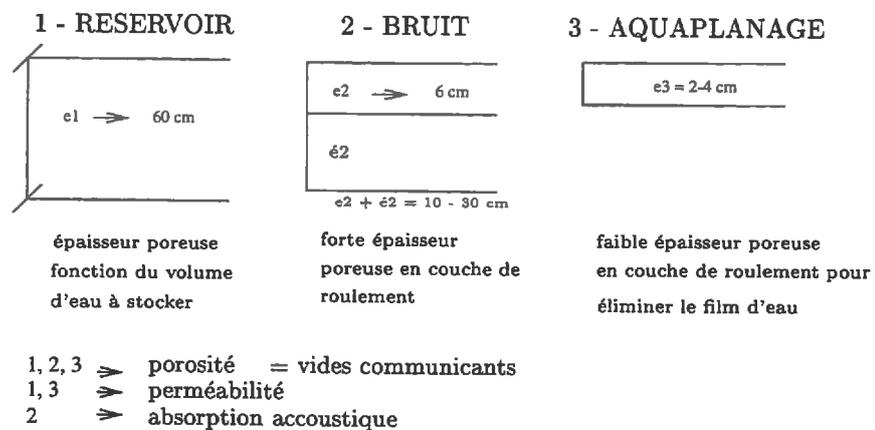


FIG. A.1 - Structures poreuses : objectifs, principes

### A.3 Enrobés drainants minces

Nés au cours des années 60 aux Etats-Unis [38], les enrobés drainants minces sont d'abord développés sur les pistes d'aérodromes, ils font ensuite l'objet de sections d'essais en Hollande en 1971. Leurs avantages sont bien connus: adhérence par temps de pluie, suppression des projections d'eau, réduction du bruit, coût relativement faible.

En France, c'est à partir de l'année 1977 que cette technique a fait l'objet de nombreuses études et expérimentations [73]. Compte tenu des bons résultats et des avantages spécifiques de cette technique, une utilisation à plus grande échelle

a été proposée. On peut compter au 1er janvier 1995 (tous réseaux confondus) 30,5 millions de m<sup>2</sup> appliqués sur autoroute et route nationale [101]. Depuis décembre 1994, ils font l'objet d'une norme homologuée<sup>1</sup>, et sont normalisés sous la dénomination "bétons bitumineux drainants" (BBDr).

Deux types d'enrobés minces peuvent être utilisés :

1. les enrobés drainants de 4 cm d'épaisseur utilisés en Europe. Ils sont employés en raison de leur capacité à drainer et à stocker l'eau, ainsi que pour leurs propriétés acoustiques (réduction du bruit de roulement, voire absorption des bruits extérieur. Différents intervenants européens ont mis en avant toutes ces qualités. On peut citer parmi eux [6, 20, 34, 74, 96, 100] en France, [25] en Belgique, [38] en Hollande, [13] en Grande-Bretagne, [114] pour la Suède, et [2, 62] pour la Suisse.
2. les enrobés drainants très minces (2 cm d'épaisseur) utilisés aux Etats-Unis, appelés aussi enrobés ouverts. Ils sont surtout utilisés pour éviter la formation d'eau en surface et pour accroître la sécurité routière.

### A.3.1 Description et formulation

Les enrobés drainants sont fabriqués à partir de matériaux analogues à ceux des bétons bitumineux classiques. Ils sont utilisés comme couche de roulement, reposant sur une membrane étanche qui assure leur isolement d'un point de vue hydraulique. Leur forte teneur en vides (20 à 24 %) permet à l'eau de percoler jusqu'à la base de la couche puis de s'écouler le long de l'interface avec la membrane étanche, suivant la ligne de la plus grande pente de la chaussée.

Ils sont préparés à partir d'un bitume pur ou modifié, de granulats et éventuellement de dopes et/ou additifs minéraux ou organiques, dosés, chauffés et malaxés dans une installation appelée centrale d'enrobage, transportés et mis en oeuvre sur chaussée.

Plusieurs types de formulations sont proposés tant par l'administration que par les entreprises. Ces formulations diffèrent entre elles par la granulométrie des granulats, la teneur en liant ou la nature de ce dernier, ainsi que par l'adjonction d'additifs.

L'optimisation des formulations s'est faite pour concilier diverses propriétés d'usage, parfois contradictoires, et pour faciliter l'emploi et la pérennité des qualités hydrauliques et acoustiques.

---

1. La norme NF P 98-134.

### A.3.2 Perméabilité

La perméabilité est déterminée en mesurant le temps d'écoulement d'un volume d'eau à travers une surface donnée de revêtement. Il existe plusieurs types d'appareils qui fonctionnent selon ce même principe [34] :

- le perméamètre type LRPC (Laboratoire Régional des Ponts et Chaussées) de saint-Brieuc ;
- le perméamètre automatique du Centre d'Etudes et de la Construction des Prototypes (CECP) d'Angers ;
- le perméamètre de chantier ;
- la mesure de la perméabilité horizontale au traceur radioactif [84].

## A.4 Chaussées poreuses urbaines (CPU)

Face aux risques de déficiences en eau en période estivale et aux problèmes d'inondations en période hivernale, la technique classique qui consistait à surdimensionner le réseau d'évacuation des eaux pluviales s'avère onéreuse (jusqu'à 50 000 F le mètre linéaire de collecteur  $\phi$  4,5 m à 12 m de profondeur). Les collectivités locales ont donc été amenées à innover et à envisager des solutions compensatoires "alternatives". Leur concept est le suivant :

- recueillir les eaux pluviales ;
- en assurer la rétention ;
- les évacuer lentement ;
- voire infiltrer l'eau dans le sol en place.

Comme la voirie représente une grande partie des surfaces imperméables, l'idée est venue d'utiliser les structures de chaussée pour stocker les eaux de ruissellement à la manière d'un bassin de rétention.

A l'origine les chaussées étaient poreuses : ainsi le "macadam" était constitué de pierres cassées de granulométrie serrée (40/60 par exemple) traitées éventuellement par pénétration d'émulsion de bitume afin d'améliorer la cohésion. Avec l'évolution des techniques routières, les ingénieurs prirent conscience de l'action néfaste de l'eau sur les chaussées, car :

- elle modifie et affaiblit la portance des sols ;
- elle désorganise et fatigue prématurément les structures (cycles gel/dégel, désenrobage) ;
- elle érode les fondations et décolle les interfaces ;
- elle peut supprimer l'adhérence (verglas, pluie,...).

La solidité de la chaussée est donc liée à son étanchéité, à sa compacité, et à l'enrobage des granulats par le liant.

En 1970, les sociétés d'autoroutes, en prenant en compte les expériences américaines concluantes, décident de développer la techniques des enrobés drainants à plus grande échelle. Avec leur succès viennent en 1975 les bétons poreux, et en 1978, la première expérimentation française de chaussée entièrement poreuse à double fonction de circulation et de stockage des eaux pluviales (parking du Laboratoire Régional des Ponts et Chaussées de Bordeaux).

### A.4.1 Description

Les chaussées poreuses sont constituées de matériaux drainants à forte porosité mis en oeuvre en une ou plusieurs couches sur une épaisseur globale dépassant celle d'une couche de roulement et pouvant atteindre 50 cm. Elles sont obtenues grâce à :

- des enrobés drainants recouvrant des graves bitumes ou des graves non traitées drainantes ;
- des bétons poreux ;
- des pavés perméables ;
- des dalages enherbés.

Elles occupent la structure de certains équipements publics, tels que la voirie (comme par exemple la chaussée à structure réservoir de la rue de la Classerie à Rezé, Nantes, (fig. A.2), les parkings, les terrains de sports, etc...[90].

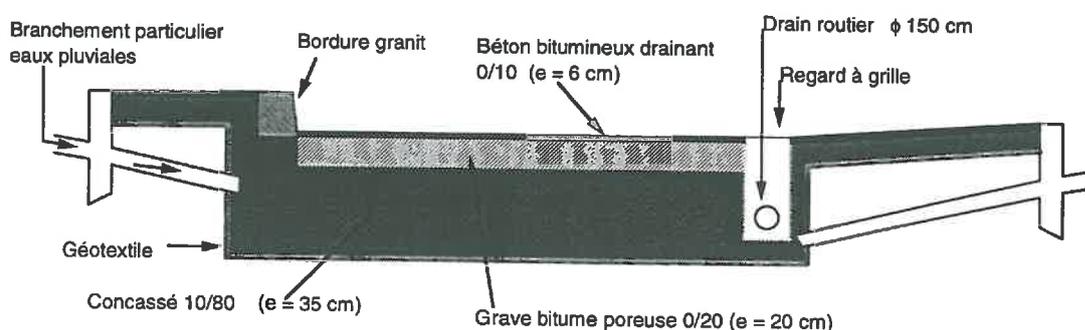
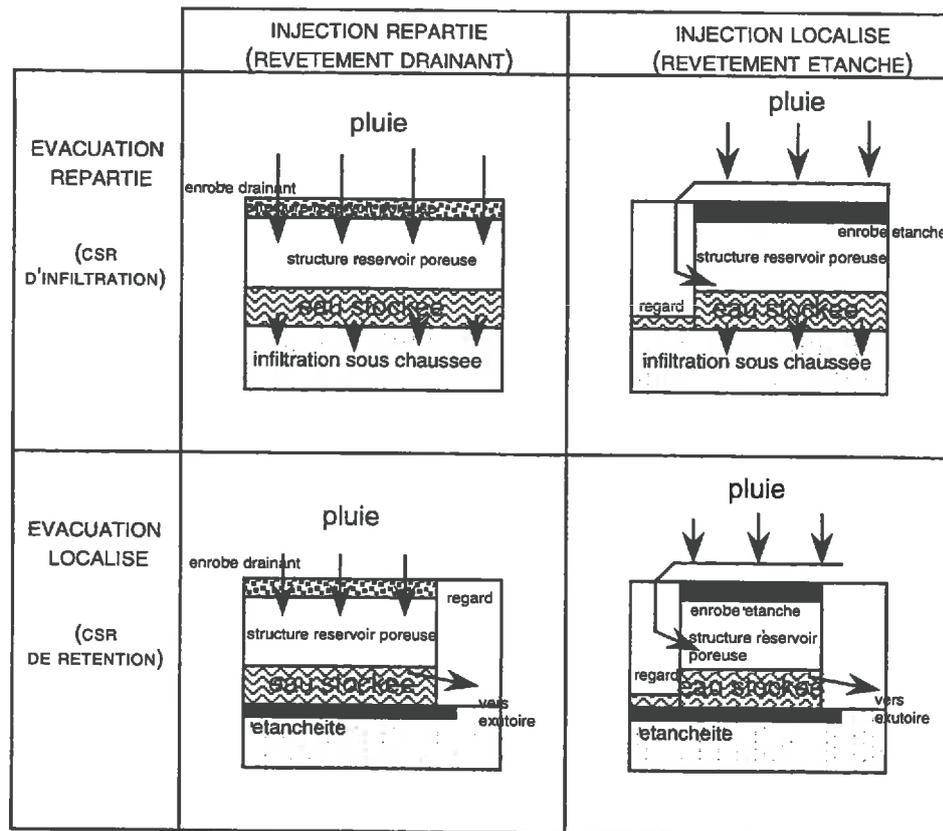


FIG. A.2 - Exemple de chaussée à structure réservoir à Rezé (Nantes)

Ces structures ont une très grande capacité d'absorption (jusqu'à 36 000 mm/h) permet un stockage temporaire des eaux pluviales, avant leur départ, soit vers des drains, soit vers le sol sous-jacent (fig. A.3).



CSR: Chaussées à Structures Réservoirs

FIG. A.3 - Différentes chaussées à structures réservoirs

#### A.4.2 Qualité acoustique

A l'origine les structures réservoirs ont été étudiées pour écrêter les pluies d'orages, mais très vite elles ont révélé leurs propriétés acoustiques. Le rapport entre ces propriétés, la porosité et l'épaisseur des couches a été très vite mis en évidence. De là est né le concept de "Chaussée Poreuse Urbaine" (CPU) constituée d'une couche de roulement en enrobé drainant et d'une couche ou plusieurs couches de bases drainantes (exemple de la chaussée à structure réservoir à Rezé, Nantes, figure A.2).

## Annexe B

# Etat des connaissances sur le colmatage des enrobés drainants

### B.1 Introduction

La porosité des chaussées drainantes leur confère des qualités hydrauliques et acoustiques. Ces qualités, qui font le succès de ce type de structure routière (sécurité par temps de pluie, réduction du bruit de roulement), tendent à diminuer, voire à disparaître, en raison du colmatage par dépôts de sédiments dans les pores de surface.

Les colmatants des enrobés drainants sont de nature variable (sable, matières organique, argile, papier, aluminium, fibres,...) [89]. Ils proviennent principalement d'apports extérieurs, soit par transport éolien des matériaux environnants, soit par la perte de matériaux d'origines diverses accumulés sur les véhicules. On peut aussi penser aux apports par usure des pneumatiques des véhicules. Tous ces matériaux, lessivés par temps de pluie, s'accumulent dans les pores du revêtement et obturent les vides de l'enrobé drainant.

La possibilité de l'usure interne du matériau poreux (évolution par attrition des granulats/oxydation du liant) est très peu probable, car en France les granulats utilisés répondent aux exigences de la norme NF P 98-134.

### B.2 Connaissances actuelles sur le colmatage

Le revêtement poreux se colmate de manière inexorable, à une vitesse plus ou moins rapide selon la localisation de la chaussée. On constate après un an une chute de perméabilité (drainabilité) de l'ordre de :

- 30 à 50 % en rase campagne ;
- 40 à 70 % en ville ;

- 60 à 90 % en milieu très polluant ou sur bande d'arrêt d'urgence.

Au-delà de cette première année, la situation semble se stabiliser et l'on ne note plus qu'une décroissance autour de 10 à 25 %.

Il semble, d'après A. Pichon [89], que le colmatage ne concerne qu'une partie superficielle (les deux premiers centimètres de l'enrobé), soit deux ou trois rangées de granulats, où les sédiments colmatants envahissent aisément toute la porosité (pores ouverts en surface, pores immédiatement sous-jacents). L'effet du temps se fera sentir par accumulation des dépôts dans ces zones.

De manière simple, le colmatage est observé dès l'apparition des projections d'eau et du ruissellement sur la chaussée par temps de pluie. D'un point de vue plus technique, le colmatage est atteint lorsque la vitesse d'infiltration des eaux, mesurée par un drainomètre de chantier<sup>1</sup>, est inférieure à 0,4 cm/s : la perméabilité initiale étant comprise entre 0,8 et 2 cm/s.

Le matériau colmatant est constitué principalement de sable grossier. Cette caractéristique n'explique pas les observations, à la loupe binoculaire et au microscope électronique des copeaux de colmatant, qui montrent que le sédiment colmatant apparaît comme un assemblage compact de grains de sable de 50  $\mu\text{m}$  à 2 mm [89], dont les grains les plus fins remplissent l'espace libre laissé par les plus gros. Cependant, les différentes analyses du colmatant n'expliquent pas, en l'absence de matériaux fins argileux ou organiques, cet aspect "cimenté" du colmatant qui lui confère une certaine rigidité et une bonne résistance lors des opérations de décolmatage. En effet, l'efficacité des opérations de décolmatage reste très limitée. Le gain moyen en perméabilité est compris entre 10 à 15 %, comme le montrent tous les résultats dont on dispose actuellement.

Nous sommes donc amenés à penser que c'est au cours des phases successives d'humidification et de dessiccation que les grosses particules constituant le colmatant s'agglomèrent grâce à des teneurs très faibles en particules colloïdales pour former un solide ; c'est ce que nous avons essayé de démontrer au cours de ce travail.

### B.3 Facteurs influençant le colmatage

De part la nature poreuse des enrobés drainants, le colmatage par infiltration et accumulation des sédiments colmatants est inévitable. Néanmoins, la vitesse et le degré de colmatage des revêtements poreux sont fonction de trois paramètres :

- le matériau poreux : l'emploi des granulats résistants très bien à l'attrition est aussi important que le choix de la taille D des granulats. Plus celle-ci est faible et plus le colmatage est rapide [11]. Il semble donc que le

---

1. D'après la norme NF P 98-254-3.

meilleur compromis entre la réduction des projections d'eau, l'adhérence, la réduction du bruit et la durabilité, est obtenu pour une granulométrie 0/10 discontinue [7]. Bien que les formulations 0/6 en matériau drainant donnent une bonne qualité d'adhérence, les enrobés drainants de cette catégorie se colmatent dès la première année même sur un site très peu polluant. Par ailleurs, la formulation doit contenir un dosage en sable maximal et une teneur en fines maximale : des formulations à moins de 13 % de sable et avec une teneur en fines de 3 à 4,5 % conduisent à de meilleurs résultats de drainabilité lors de la mise en service.

- le milieu : le milieu environnant est un paramètre déterminant pour le processus de colmatage. En effet, la nature des colmatants et le mécanisme de colmatage semblent différents d'un site à l'autre. On distingue des zones de pollution industrielle, urbaine ou passagère telle que l'exécution d'un chantier dans une bande de 1 à 2 km. On remarque aussi un colmatage plus rapide en milieu urbain qu'en rase campagne.
- le trafic : l'action du trafic sur le colmatage des voies circulées est assez mal connue. Néanmoins, le trafic lourd et rapide semble favoriser l'auto-nettoyage des revêtements poreux par temps de pluie [89]. Sur les zones peu circulées (bande d'arrêt d'urgence, zone de stationnement), le colmatage est plus rapide : en 1 à 2 ans, on peut parvenir à des vitesses d'infiltration des eaux inférieures à 0,2 cm/s.

Pour lutter contre ce phénomène de colmatage des chaussées à titre préventif ou curatif<sup>2</sup>, il existe des appareillages générant différentes opérations simultanées et/ou successives au niveau de la surface du revêtement, afin de produire le décolmatage :

- balayer ;
- humidifier, détremper ;
- projeter de l'eau sous pression ;
- aspirer sous forte dépression (20 à 35 000 m<sup>3</sup>/h) à des vitesses et fréquences appropriées. Ces vitesses sont difficilement mesurables, car elles dépendent des conditions de contact avec le revêtement et la géométrie de la chaussée.

Actuellement, il existe différentes machines [12], dites balayeuses-aspiratrices (bien qu'elles ne balayent pas), qui fonctionnent, comme dans le cas des matériels RUGOR, JET ROAD, suivant le principe conjugué des deux actions suivantes :

- pulvérisation d'eau à moyenne ou haute pression (entre 150 et 350 bar) et sous fort débit d'eau, 120 à 200 litres/minute, pour saturer et décohésionner la "gange" de colmatant et la décoller de la structure ;

---

2. Un traitement préventif se situe au-delà d'une perméabilité de 0,5 à 0,6 cm/s. Par contre, le traitement curatif concerne des vitesses d'infiltration inférieures au seuil de colmatage, comprises entre 0,2 à 0,3 cm/s.

- aspiration la plus puissante possible pour récupérer la solution "eau+colmatant".

Certains de ces matériels (procédés ZOAD-CLEAN, HUWER) sont équipés de systèmes permettant :

- le recyclage des eaux aspirées pour augmenter l'autonomie du matériel et réduire les consommations en eau ;
- le filtrage des eaux polluées et la récupération des boues avant traitement si nécessaire.

Les opérations d'entretien des enrobés par des dispositifs de nettoyage haute pression sont apparues en France au début des années 1990. Les premières réalisations se sont faites sur les bandes d'arrêt d'urgence (B.A.U.) dans le but de prévenir le colmatage par le haut. Mais c'est en 1993 que les opérations d'entretien préventif connaissent un grand essor. On estime à environ 1 million de m<sup>2</sup> les surfaces traitées [12].

Les rendements de ces matériels dépendent de la configuration du site et de la possibilité de recyclage des eaux polluées récupérées par décantation et filtration. Ils sont compris entre 5000 et 15 000 m<sup>2</sup>/jour pour une largeur de traitement variant entre 2,2 à 2,5 m. Les coûts de ces opérations sont très variables : 2,5 à 8 F HT/m<sup>2</sup> sans compter les frais de signalisation, et un coût moyen de 3 à 4 F HT/m<sup>2</sup>. La quantité de matériau colmatant récupéré peut parfois être importante, elle peut atteindre 100 à 250 g/m<sup>2</sup>.

Pour évaluer l'efficacité du traitement, on effectue des mesures de perméabilité avant et après le nettoyage, par le drainomètre de chantier<sup>3</sup>. Ces mesures sont réalisées au moins une heure après le traitement, et les résultats doivent représenter au moins la moyenne de 15 mesures réalisées au même endroit. Au terme des expériences acquises à travers des chantiers tant de démonstration que d'application industrielle, on constate qu'il n'est pas possible de retrouver la valeur de la perméabilité initiale. Néanmoins, on signale une amélioration de la vitesse d'infiltration jusqu'à 50 %, soit un gain en moyenne de 10 à 15 % [84]. Il serait donc plus judicieux de parler dans ce cas-là de nettoyage de chaussée que de décolmatage, car on ne récupère pas la perméabilité initiale.

## B.4 Caractérisation des colmatants

Les analyses des produits de colmatage [11] montrent que les résultats sont variables selon :

- le site à traiter ;

---

3. D'après la norme NF P 98-254-3.

- l'environnement du chantier ;
- le mode de traitement.

Les matériaux récupérés se présentent sous forme d'un sable plus au moins fin et peu argileux. Ils contiennent parfois des quantités importantes d'hydrocarbures (3 à 5 % identifiés à du bitume et à des huiles diverses [83]), de matières organiques et de métaux lourds en particulier du plomb (pour un colmatant d'enrobé drainant à fort trafic, on trouve 1800 mg de plomb pour un 1 kg de colmatant à Paris et à Bordeaux 1200 mg/kg [19]).

### B.4.1 La distribution granulométrique

Les colmatants sont collectés soit de façon manuelle ou mécanique (balayeuse-aspiratrice). Le peu d'informations dont on dispose actuellement sur la nature de ces matériaux, est illustré en tableau B.4.1. Ce dernier montre que la distribution granulométrique de ce matériau est essentiellement sableuse, avec toutefois entre 14 et 40 % de particules inférieures à 100  $\mu\text{m}$ , et une fraction argileuse inférieure à 2 % en masse.

Les colmatants des chaussées à structure réservoir ont les mêmes caractéristiques granulométriques que les colmatants des enrobés drainants [18]. En effet, la distribution granulométrique est caractérisée par une dominance des sables (en moyenne 75 % en masse), une proportion faible en limons (en moyenne 10 %) et peu ou pas d'argile.

### B.4.2 Minéralogie des colmatants

On dispose encore une fois de très peu de données sur la minéralogie des produits colmatants. Aussi, nous avons effectué une analyse aux rayons x sur des boues de décolmatage récupérées sur le site de la rue de la Classerie à Rezé près de Nantes. L'appareil utilisé est un matériel de nettoyage doté d'un système de recyclage et filtrage des eaux polluées à 50  $\mu\text{m}$  et de pulvérisation à une pression de l'ordre de 400 bars.

Le tableau B.4.2 montre que le quartz, les plagioclases et les feldspaths sont les éléments dominants dans la constitution des colmatants. Les minéraux micacés en sont les constituants secondaires. On note aussi que la présence de montmorillonites, de sépiolites et des amphiboles. Cependant, les amésites se résument à des traces.

La comparaison de ces résultats avec ceux trouvés par A. Pichon [89] confirme que le quartz est bien le constituant principal et que les argiles sont très faiblement représentées. Par contre, la calcite ne figure pas parmi les constituants principaux

Réf.	Site	Echantillon	D <sub>10</sub> <sup>a</sup>	D <sub>50</sub>	D <sub>90</sub>	% < 100 μm
{1}	Colmatant prélevé manuellement sur l'autoroute A1 enrobé poreux (0/10 discontinu 2/6mm)	colmatant	30	350	1500	14
		colmatant	25	300	2500	19
		colmatant	65	200	1500	15
{1}	Boue de décolmatage, Paris, rue de la fontaine au Roy et rue Jeanne d'Arc	Boue	17	225	2000	28
		Boue	8	160	1000	34
{2}	Boue de décolmatage Bégles, parking du XIV juillet enrobé poreux (0/14 discontinu 2/6mm)	Boue	12	298	1587	40
{3}	Boue de décolmatage (chaussées poreuses) de différents parkings de la région Bordelaise	Boue	18	323	3232	% < 125 μm 30
			(valeurs moyennes / 4 échantillons)			
{1} Pichon, 1993		{2} Legret, Demare, 1991		{3} Colandini, 1994		

TAB. B.1 - Granulométrie de quelques colmatants

<sup>a</sup> on rappelle que D<sub>y</sub> est l'ouverture de tamis (μm) au travers duquel passe y % du poids de l'échantillon.

de notre analyse.

## B.5 Entretien des enrobés drainants

Quand le revêtement drainant arrive au terme de sa durée de vie mécanique, ou de ses caractéristiques de surface, il convient d'effectuer un entretien généralisé de la couche de roulement. Les solutions d'entretien peuvent se ranger en trois catégories [12] :

- l'enlèvement de la couche par fraisage à froid de tout ou partie de l'enrobé et remise en place d'une nouvelle couche ;
- le recyclage de l'enrobé drainant in situ ou en centrale par la thermorégénération ;
- le revêtement par une nouvelle couche drainante ou traditionnelle avec imperméabilisation ou pas de l'ancien enrobé au moyen d'un enduit superficiel ou d'un coulis bitumineux.

Minéraux	Raie de référence en Å	Quantité
Montmorillonite	13.6-4.47	tr
Sépiolite	12.8-2.58	tr(p?)
Palygorskite	10.4-6.36	
Micacés	9.98-3.33	+++
Amphibole	8.3	tr
Amésite	7.03-3.52	++
Gypse	7.63-4.28	
Anhydrite soluble	6.05	
Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> , 10 H <sub>2</sub> O	5.50	
Anhydrite	3.50	
Natron Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> , 10H <sub>2</sub> O	3.04-2.90	
Thénardite Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	2.96-2.37	
Aphthalite	2.78	
Glaubérite	2.84-2.94	
Halite NaCl	2.81	
Syngénite	3.13-3.11	
Quartz	4.25-3.34	++++
Aragonite	3.40-2.34	
Feldspaths K	3.24	++++
Plagioclases	3.19	++++
Calcite	3.03-2.28	
Pyroxène	3.00 2.89	
Dolomite		

++++ très forte quantité

++ moyenne quantité

tr traces

+++ forte quantité

+ faible quantité

p? présence incertaine

TAB. B.2 - Minéralogie du colmatant de la rue de la Classerie à Rezé

# Annexe C

## Les argiles

### C.1 Définitions

L'argile est définie de deux façons :

#### C.1.1 Définition granulométrique

Il s'agit de particules de tailles inférieures à 2 microns sous forme de plaquettes ou d'aiguilles, formées à partir de l'altération physico-chimique des roches : les feldspaths se transforment en séricites, illites, chlorites, et smectites ; les micas donnent des vermiculites, des chlorites, et des illites ; les ferromagnésiens produisent des chlorites [109].

L'affinité pour l'eau des argiles (appelée "activité") est liée à leur structure cristalline particulière qui leur confère un comportement assez singulier : cohésion, plasticité, gonflement, etc.

#### C.1.2 Définition minéralogique

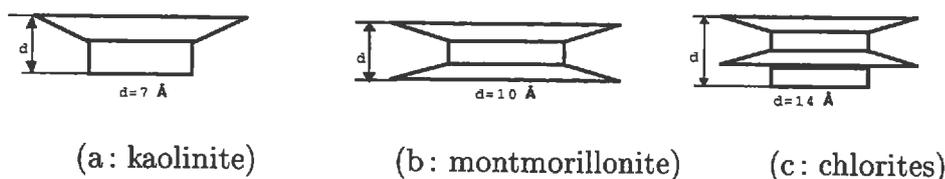
Les argiles ont une structure cristalline que l'on peut décrire comme un empilement de feuillets constitués essentiellement d'une superposition alternée de couches tétraédriques de silice ou octaédriques d'alumine [23, 112]. Les grandes variétés des argiles sont dues au fait des substitutions isomorphes, i.e. certains cations constituant le réseau cristallin sont remplacés par d'autres de moindre valence (le silicium et l'aluminium sont remplacés respectivement par l'aluminium et le magnésium). L'activité des argiles est liée aux désordres cristallins qui se manifestent par un déficit de charges affaiblissant les forces ioniques de liaison entre les feuillets. Ces liaisons peuvent être plus ou moins fortes suivant le type d'argile. Si on appelle particule "le plus petit empilement typique de feuillets que l'on peut isoler en laboratoire" [94] cela représentera un empilement variable de feuillets :

- une particule de kaolin de diamètre de 1  $\mu\text{m}$  et d'épaisseur de 0,08  $\mu\text{m}$  correspondant à 115 feuillets ;

Surface spécifique B.E.T. (surface externe)	5 à 25 (peut atteindre) 70 m <sup>2</sup> /g
Capacité d'échange de cations (C.E.C.)	3 à 15 meq/100 g
Limites d'Atterberg	I.P. 15
Valeur de l'essai au bleu de méthylène	2 g pour 100 g

TAB. C.1 - *Caractéristiques des kaolinites*

- particule d'illite de diamètre de 0,3  $\mu\text{m}$  et d'épaisseur de 0,01  $\mu\text{m}$  correspondant à 10 feuillets ;
- particule de montmorillonite de diamètre de 0,1  $\mu\text{m}$  et d'épaisseur de 0,01  $\mu\text{m}$  correspondant à 8 feuillets.

FIG. C.1 - *Schématization de structures cristallines de quelques argiles*

Les minéraux argileux sont ainsi caractérisés cristallographiquement par leur épaisseur de feuillets (fig. C.1). On distingue les familles à 7 Å (kaolinite), à 10 Å (muscovite, pyrophyllite, montmorillonite) et à 14 Å (chlorite).

Les propriétés de chaque type d'argile sont résumées comme suit [23].

### C.1.3 Groupe de la kaolinite

Les argiles de ce groupe (tab. C.1) sont formées par l'association d'une couche tétraédrique et d'une couche octaédrique (fig. C.1). Ce groupe ne présente que peu de substitutions isomorphiques. Le diamètre équivalent des dimensions des particules varie entre 0,04  $\mu\text{m}$  et 10  $\mu\text{m}$ , leur épaisseur entre 100 Å et 2000 Å [67].

### C.1.4 Groupe des argiles micacées

Pour ce groupe d'argile (tab. C.2), la couche octaédrique est comprise entre deux couches tétraédriques (fig. C.1, c). Les substitutions isomorphiques se font au niveau de la couche tétraédrique. On distingue les muscovites  $(OH)_2Al_2[Si_4 - xAl_{|k}O_{10}]$ , où l'ion k ne permet pas d'échanges importants en cations (CEC : 10 meq/100g). Ainsi que la famille des illites  $(OH)_2Al_2[Si_4 - xAl_{|kx}O_{10}]$ , avec  $0,5 < x < 0,75$ .

Les illites sont des particules de dimensions inférieures aux kaolinites, leurs diamètres équivalent moyen est 0,3  $\mu\text{m}$ , et leur épaisseur est de 100 Å.

Surface spécifique B.E.T. (surface externe)	30 à 110 m <sup>2</sup> /g
Ethylène glycol (surface externe + interne)	180 m <sup>2</sup> /g
Capacité d'échange de cations (C.E.C)	10 à 40 meq/100 g
Limites d'Atterberg	WP 50, WL 120, IP 70
Valeur de l'essai au bleu de méthylène	3,5 g pour 100 g

TAB. C.2 - *Caractéristiques des argiles micacés*

Surface spécifique B.E.T. (surface externe)	100 à 200 m <sup>2</sup> /g
Ethylène glycol (surface externe + interne)	880 m <sup>2</sup> /g
Capacité d'échange de cations (C.E.C.)	80 à 150 meq/100 g
Limites d'Atterberg	WP 60 à 100, WL 100 à 700
Valeur de l'essai au bleu de méthylène	20 à 30 g pour 100 g

TAB. C.3 - *Caractéristiques des smectites*

### C.1.5 Groupe des smectites

Ce sont des argiles de même type que les micas, mais les liaisons entre feuillets sont plus faibles. Les substitutions isomorphiques sont principalement localisés en couche octaédrique. Elles se distinguent par leur grande affinité à l'eau (tab. C.3), due aux propriétés de gonflement (l'existence de la charge résultante entraîne une cristallinité moins parfaite, i.e., une répulsion supplémentaire entre feuillets, et donc une surface spécifique plus grande), qui peut provoquer même des écartements de feuillets variables suivant les conditions du milieu. On peut distinguer parmi ces argiles les montmorillonites (fig. C.1, b), de formule chimique  $(OH)_2(Al_{1,67}xAl_{Na_{0,33}} - Mg_{0,33})[Si_4 - O_{10}]$

### C.1.6 Argiles fibreuses (tab. C.4)

Ce sont des silicates alumino-magnésiens dans lesquels l'aluminium et le magnésium sont en proportions à peu près égales. Elles sont caractérisées par leur aspect fibreux: la structure en coupe de ces minéraux présente l'aspect d'une brique creuse. On distingue deux familles: les sépiolites et les attapulgitites, caractérisées chacune par la largeur de leur ruban.

## C.2 Propriétés des argiles

La structure particulière des argiles leur confère un ensemble de propriétés de comportement liées à leur affinité pour l'eau (appelée activité): cohésion, plasti-

Surface spécifique B.E.T. (surface externe)	100 à 400 m <sup>2</sup> /g
Capacité d'échange de cations (C.E.C.)	20 à 30 meq/100 g

TAB. C.4 - *Caractéristiques des argiles fibreuses*

cité, gonflement, etc...

Leur état de division granulométrique (particules < 2 μm) est telle que les forces de surface deviennent prépondérantes par rapport aux forces de gravité. Ainsi la stabilité de la suspension est liée à ces phénomènes superficiels.

### C.2.1 Capacité d'échange cationique (C.E.C.)

Le déficit de charge dans la couche octaédrique induit une charge négative globale de l'argile dans les conditions naturelles. En effet, les propriétés des argiles sont liées à cette charge. On dit donc qu'une argile est d'autant plus active que sa structure cristalline est désorganisée. Les déficits de charges affaiblissent les forces ioniques de liaison entre feuillets. Ceux-ci ont tendance :

- soit à se séparer les uns des autres : le cristal argileux s'individualise alors en particules très fines,

- soit à s'écarter laissant l'eau accéder aux espaces interfoliaires. (par exemple dans le cas d'une smectite, la surface spécifique interfoliaire est de 800 m<sup>2</sup>/g, en plus de la surface externe qui est de 80 m<sup>2</sup>/g [109]).

Ces surfaces abondamment chargées du fait des déficits de charges donnent la faculté à l'argile d'adsorber de façon réversible des cations et des dipôles d'eau à sa surface et entre ses feuillets.

Les argiles sont caractérisées par leur capacité d'échange cationiques (C.E.C), exprimée en milli-équivalents susceptibles d'être échangés par 100 g de matériau. Elle est d'autant plus grande que l'argile sera gonflante (un équivalent est le nombre de charge élémentaires dans une mole de solution). Les différents travaux expérimentaux montrent que la capacité d'échange cationique augmente avec le pH. En effet, elle diminue en milieu acide, et augmente en milieu basique. Les cations les plus susceptibles d'être échangés sont :

$N^+$  ,  $NH_4^+$  ,  $Mg^{++}$  ,  $Ca^{++}$  , et les dipôles d'eau.

### C.2.2 Formation de la double couche

Les particules argileuses présentent une charge globale négative. En milieu aqueux, les particules s'entourent d'un certain nombre de cations de façon à

respecter l'électroneutralité du système eau-argile par compensation des charges.

C'est Helmholtz (1879) qui fut le premier à étudié la répartition des charges électriques au voisinage de l'interface solide-liquide, suivi de Gouy (1910) et Chapman (1913), et enfin Stern et Graham ont affinés les calculs.

La modification de l'environnement ionique entraîne l'apparition, autour des particules, d'un nuage diffus résultant de deux effets antagonistes : attraction et diffusion. Le modèle proposé par Stern est composé (fig. C.2) :

- d'une couche rigide liée au solide (couche de Stern),
- d'une couche diffuse (couche de Gouy).

Ces deux couches présentent une différence de potentiel, qui est caractérisée par un paramètre appelé potentiel zeta ( $\zeta$ ), marquant la surface de séparation entre ces dernières.

### C.2.3 Epaisseur de la double couche

L'épaisseur de la double couche est définie par l'expression suivante :

$$X = \sqrt{\frac{\epsilon k T}{8 \pi e^2 Z_i^2 C_i}}$$

- e : charge de l'électron ;
- $\epsilon$  : constante diélectrique du milieu ;
- k : constante de Boltzmann ;
- $Z_i$  : valence de l'ion i ;
- $C_i$  : concentration de la solution (moles/l).

Cette épaisseur varie avec les conditions du milieu, elle diminue lorsque :

- la concentration ionique du milieu s'accroît ;
- la valence de l'électrolyte du milieu s'accroît ;
- la température du milieu diminue ;
- la constante diélectrique du milieu diminue.

### C.2.4 Potentiel zéta ( $\zeta$ )

Par définition [92], le potentiel zéta est le potentiel qui se situe au niveau du plan de séparation de la couche fixe par rapport à la couche mobile. C'est donc le plan de rupture, localisé à une distance x de la surface. Il est donné par la formule :

$$\zeta = \phi_0 e^{-kx}$$

Ainsi, le potentiel zéta est lié d'une part à la particule par le potentiel de surface  $\phi_0$  et d'autre part au milieu liquide par le paramètre k représentant l'inverse

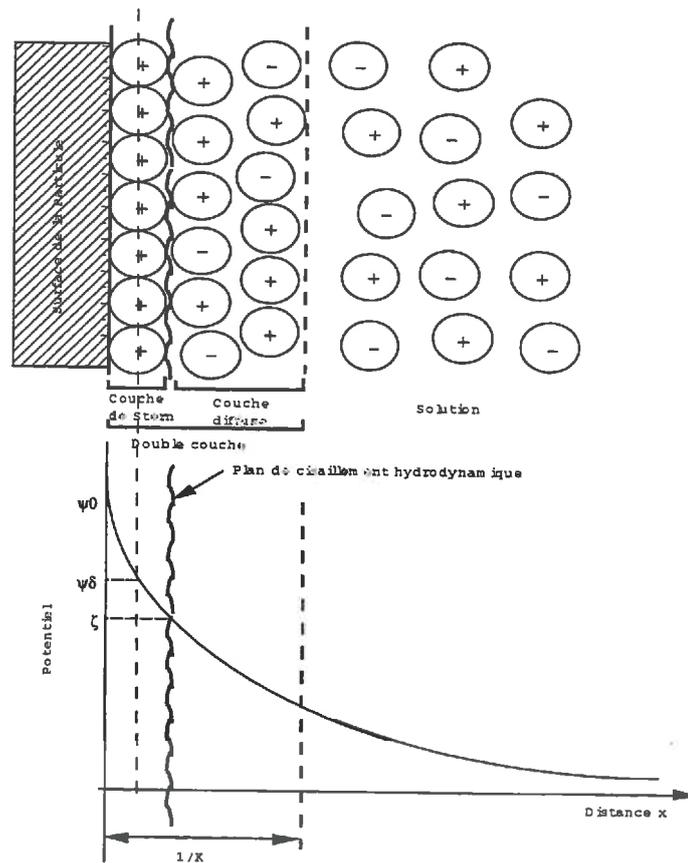


FIG. C.2 - Structure de la double couche et la variation du potentiel (d'après Stren et Graham)

de l'épaisseur de la double couche, qui est fonction de la nature et la concentration du milieu électrolytique.

Le potentiel zeta est l'un des paramètres déterminant de l'état de floculation des particules en suspension. Il mesure la charge électrique superficielle, et il détermine la grandeur des forces répulsives interparticulaires. Ainsi quand le potentiel zeta décroît, l'énergie de répulsion entre les particules tend à diminuer, et les forces attractives à prédominer. Les études expérimentales ont montré que plus le potentiel zeta est élevé (en valeur absolue) plus la stabilité des particules est importantes (C.5).

### C.2.5 Surface spécifique

La surface spécifique est définie comme la somme des surfaces que développe chaque grain d'une unité de masse d'un matériau finement divisé ou poreux. Elle s'exprime en  $[m^2/g]$ .

Caractéristique de stabilité	Potentiel zéta (millivolts)
Maximum d'agglomération	0 à +3
Forte agglomération	+5 à -5
Seuil d'agglomération	-10 à -15
Seuil de faible dispersion	-16 à -30
Stabilité médiocre	-31 à -40
Bonne stabilité	-41 à -60
très bonne stabilité	-61 à -80
stabilité excellente	-81 à -100

TAB. C.5 - *Echelle de stabilité des particules (d'après Riddick [92])*

La surface externe des particules cristallines est la somme des surfaces basales inférieures et supérieures et des surfaces latérales du cristallite considéré. Cette surface est mesurée par la technique d'adsorption physique.

La surface interne des particules poreuses est mesurée par la technique de la chimisorption. Deux cas sont distingués :

1. cas des argiles fibreuses : la surface interne est la surface des canaux de section constante (sépiolite, attapulgite) ;
2. cas des argiles gonflantes : la surface interne est la surface interfoliaire (espaces entre feuillets).

## C.3 Identification des argiles

Il existe plusieurs techniques d'investigation pour identifier les argiles. Parmi celles disponibles [23, 112], on peut citer :

- la mesure du potentiel zéta par la méthode de l'électrophorèse ;
- la mesure de la capacité d'échange cationique (C.E.C.) ;
- la mesure de la surface spécifique externe : la physisorption (B.E.T.) [112] ;
- la mesure de la surface spécifique totale : la chimisorption [23] ;
- la diffraction aux rayons X.

### C.3.1 Mesure du potentiel zéta

Le potentiel zéta est mesuré expérimentalement par la technique d'électrophorèse qui consiste à calculer la vitesse de déplacement des particules argileuses

chargées négativement soumises à un champ électrique  $E$ .

On détermine alors la mobilité électrophorétique  $M_e$  qui est reliée au potentiel zéta  $\zeta$  par la relation :

$$M_e = \frac{V_e}{E} = \frac{\epsilon \zeta}{4 \pi \eta}$$

$M_e$  [ $\mu\text{m}/\text{sec}/\text{volt}/\text{cm}$ ];

$V_e$ : vitesse électrophorétique ( $\mu\text{ m/s}$ );

$\epsilon$ : constante diélectrique de la solution;

$\eta$ : viscosité de cette solution (poises).

### C.3.2 Mesure de la capacité d'échange cationique (C.E.C.)

La méthode consiste à saturer le matériau par une solution d'acétate d'ammonium, à déplacer l'ammoniaque adsorbé par distillation en présence de magnésie  $\text{MgO}$ , et ensuite à doser d'ammoniac par barbotage dans une solution sulfurique [112].

### C.3.3 Mesure de la surface spécifique par physisorption (la méthode B.E.T)

La méthode par physisorption de Brunauer, Emmet et Teller, mesure essentiellement la surface externe des particules. Cette technique consiste à déterminer la quantité de gaz condensé à l'état présumé liquide sous faible pression et basse température sur l'échantillon dont on veut connaître la surface spécifique par des mesures de pression et de volume.

### C.3.4 Mesure de la surface spécifique par chimisorption

L'adsorption chimique ou chimisorption permet de mesurer la surface spécifique totale: surface externe et interne (interfoliaire) des particules argileuses.

Les méthodes par chimisorption sont nombreuses [112]. Elles font intervenir comme adsorbat des molécules polaires telles que :

- l'eau (Farrar [33]);
- l'éthylène-glycol (Dyal et Hendricks [30], Rawson [91]);
- le bleu de méthylène (Hang et Brindley [48], Tran [110]).

C'est ce dernier adsorbat que nous avons utilisé pour la détermination du comportement des colloïdes dans le milieu poreux. Nous développerons la méthode dans l'annexe suivante.

## Annexe D

# L'essai au bleu de méthylène

### D.1 Introduction

L'essai au bleu de méthylène est une méthode rapide et pratique pour le dosage des argiles. En effet, grâce à la propriété d'adsorption des molécules de cette substance par les argiles, nous pouvons déterminer soit la capacité d'échange de cations des minéraux argileux (C.E.C.) [32, 48, 82], soit la surface spécifique [58, 88].

Avant de détailler la méthode au bleu de méthylène utilisée, nous allons décrire les différentes propriétés du bleu de méthylène.

### D.2 Propriétés du bleu de méthylène

Les caractéristiques du bleu de méthylène sont les suivantes :

- la formule globale de la molécule du bleu est  $C_6H_{18}N_3SCl \cdot 3H_2O$  ;
- la structure chimique de l'ion est représentée à la figure D.1 [48] ;
- sa masse moléculaire est de 373.9 g ;
- les dimensions de la molécule, assimilée à un parallélépipède, sont 17 x 7.6 x 32.5 Å<sup>3</sup> ;
- l'aire projetée (surface moléculaire) est 130 Å<sup>2</sup> ;
- au-dessus d'un pH de 9,5, le bleu de méthylène est instable [5] ;
- les ions de bleu en solution aqueuse existent sous forme libre  $BM^+$  (monomère) et sous forme associée  $(BM^+)_2$  (dimère), le tout en équilibre [95]. L'équation résultante est :



- la constante de dissociation est de  $2 \cdot 10^{-4}$  ions g/l [95].

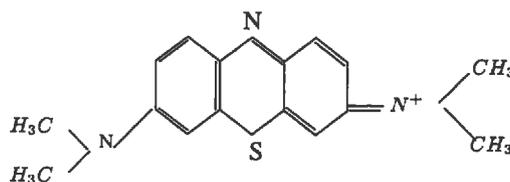


FIG. D.1 - Structure chimique du bleu de méthylène

### D.2.1 Intérêt de la méthode pour cette étude

L'avantage de ce procédé est que la valeur au bleu permet de quantifier exclusivement la fraction argileuse, sans qu'il soit nécessaire de la séparer du reste du matériau, ce qui n'est pas une opération très facile à réaliser en pratique. De plus, notre étude expérimentale est basée sur la compréhension du comportement des suspensions colloïdales à faibles concentrations dans un milieu granulaire modèle en billes de verre. Etant données les dimensions de nos échantillons (cylindre de diamètre de 4,4 cm et de hauteur de  $h = 2,5$  cm), ainsi que la faible concentration en colloïdes, une méthode d'investigation autre que le bleu de méthylène (par exemple, la méthode au banc gamma qui mesure la variation de la densité) ne sera pas assez sensible aux concentrations utilisées.

En effet, la comparaison des résultats obtenus par J.C. Borgotti [8] par cette méthode (essai au micro-bleu) avec ceux obtenus par la méthode dite à la tache [110, 109] montre une bonne concordance de ces derniers comme l'indique le tableau D.1.

### D.3 Dosage de l'argile par le bleu de méthylène

L'essai au bleu de méthylène est une méthode rapide pour le dosage des argiles. Cette méthode consiste à mettre en contact une solution de titre connu  $C_{bi}$  de bleu de méthylène avec une certaine quantité d'argile, puis à séparer par centrifugation le complexe formé et la solution.

La quantité d'argile est donnée par  $q_{arg} = V_{arg} C_{arg}$ , et la quantité de bleu introduite est  $q_{bi} = V_{bi} C_{bi}$ , les  $V_i$  et  $C_i$  sont respectivement le volume et la concentration de l'entité considérée.

Le surnageant est ensuite dosé par photolorimétrie à la longueur d'onde  $\lambda = 664$  nm pour déterminer la quantité de bleu fixé. Cette longueur d'onde  $\lambda = 664$  nm correspond au pic d'adsorption maximale du monomère du bleu de

Illite (mg)	Essai à la tache		Essai au micro-bleu	
	bleu absorbé (mg)	valeur au bleu	bleu absorbé (mg)	valeur au bleu
0,252			0,009	3,65
0,42	0,015	3,64	0,014	3,55
0,63	0,022	3,57	0,019	3,14
1,008	0,030	3,03	0,035	3,65
1,638		3,08	0,051	3,08
Moyenne		3,30		3,39

TAB. D.1 - Comparaison des valeurs au bleu obtenues par la méthode à la tache et la méthode au micro-bleu

méthylène (fig. D.2 et [48]).

Nous avons aussi tracé pour cette même longueur d'onde la courbe d'étalonnage de la concentration en fonction de la transmission (fig. D.3). On obtient donc la concentration finale en bleu de méthylène grâce à l'équation suivante :

$$C_{bf} = 11,57 - 5,8 \log(\%transmission)$$

La quantité de bleu adsorbé par l'argile en suspension est mesurée par la détermination de la quantité excédentaire de bleu dans la solution à l'aide d'un spectrophotomètre. Elle correspond donc à :

$$q_{ads} = q_{bi} - q_{bf}. \quad q_{bf} \text{ étant la quantité de bleu restant, elle est donnée par } q_{bf} = V_{bf} C_{bf}.$$

En se plaçant dans un système d'unités cohérentes, on trouve que 1 g d'argile adsorbe :

$$q_{ads} = \frac{q_{bi} - q_{bf}}{1000q_{arg}}$$

Pour 100 g d'argile (la valeur au bleu est définie pour une quantité de bleu adsorbée par 100 g de matériau), on a une valeur au bleu :

$$V_b = \frac{V_{bi} C_{bi} - V_{bf} C_{bf}}{10 V_{arg} C_{arg}}$$

Pour faciliter la sédimentation des particules en suspension dans le surnageant, nous avons ajouté un flocculant ( $CaCl_2$ ) avant centrifugation.

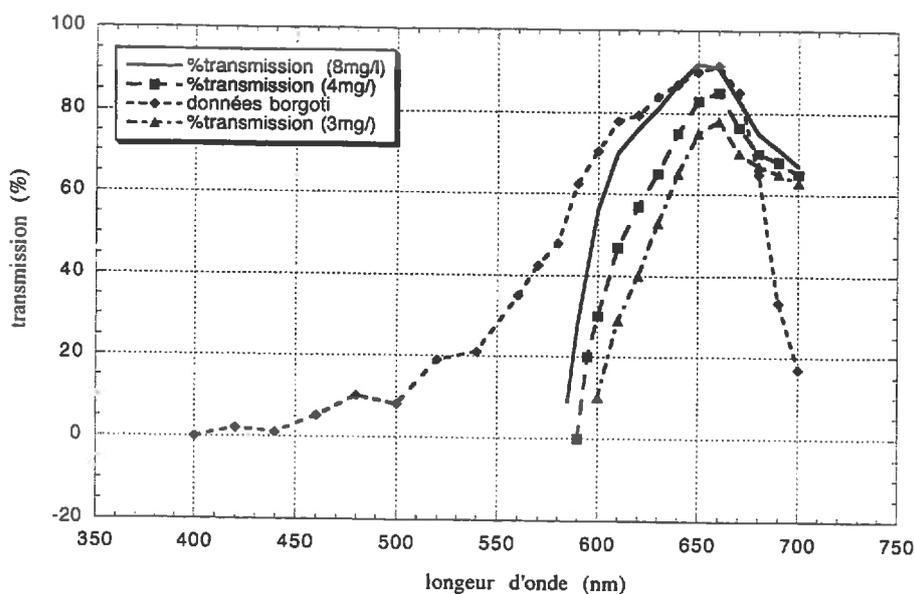


FIG. D.2 - Spectre d'adsorption du bleu de méthylène en fonction de la longueur d'onde

### D.3.1 Instruments de mesures

L'ensemble du matériel utilisé consiste en :

1 - un spectrophotomètre double faisceau de la marque JOBIN YVON HITACHI, modèle 100-60, utilisant des cuves carrées ayant un parcours optique de 10 mm. Sa précision est de  $\pm 0,3\%$  en transmission.

2 - une centrifugeuse du type Megafuge 1.0 de Heraeus-instruments ayant une vitesse de rotation maximale de 6000 tours/minute ;

3 - des balances de différentes précisions :

- la SARTORIUS basic, dont la limite de pesée est de 200 g, a une précision de  $10^{-4}$  g ;

- la METTLER PM 400, dont la limite de pesée est de 400 g, a une précision de  $10^{-3}$  g.

### D.3.2 Mode opératoire

Dans des tubes à essai adaptés à la centrifugeuse, on ajoute dans l'ordre :

- un volume  $V_{arg}$  de 1 à 2  $cm^3$  de suspension d'argile contenant une teneur en particules, qu'on notera  $C_{arg}$ ,  $V_{arg}$  et  $C_{arg}$  ;

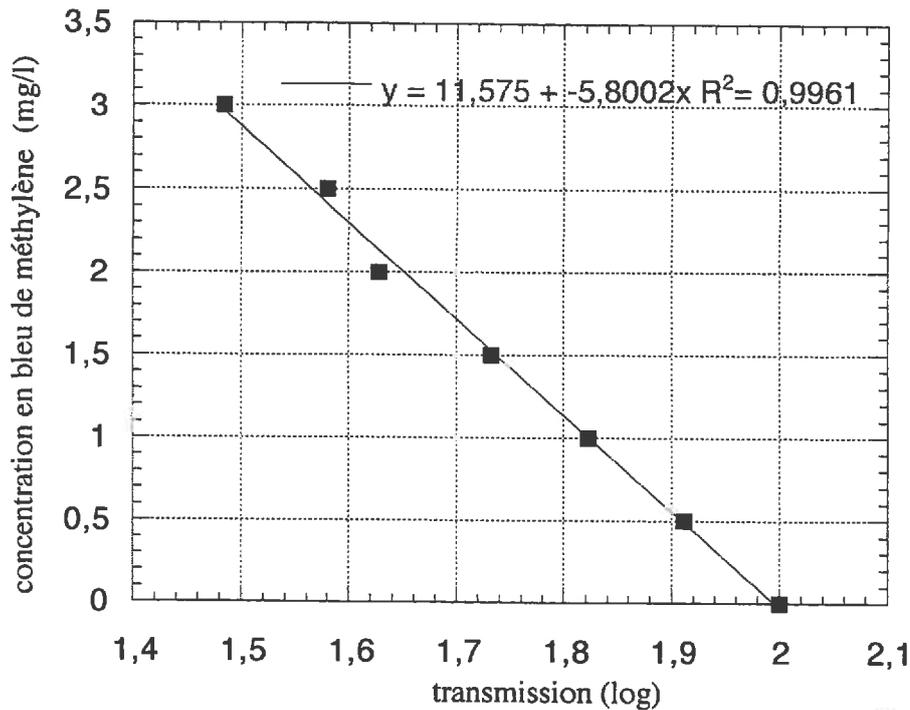


FIG. D.3 - Courbes d'étalonnage de la transmission en fonction de la concentration en bleu

- un volume de bleu de méthylène  $V_{bi}$  de titre connu  $C_{bi}$  de façon à obtenir une coloration de bleu persistant au moins pendant 5 mn ;

- 1  $cm^3$  de suspension de  $CaCl_2$  0,5 M pour faire flocculer les particules argileuses.

Ensuite,

- on centrifuge pendant 10 mn à une vitesse de 6000 tours/minute ;

- on prélève ensuite environ 5 ml pour passer le surnageant au spectrophotomètre et déterminer la teneur en bleu  $C_{bf}$  (si l'excédant en bleu est très concentré, on peut procéder à des dilutions de ce dernier) ;

- on calcule, enfin la valeur au bleu en appliquant :

$$V_b = \frac{V_{bi} C_{bi} - V_f C_{bf}}{10 V_{arg} C_{arg}}$$

-  $V_{bi}$  [ $cm^3$ ] ;

-  $C_{bi}$  [mg/l] ;

-  $C_{arg}$  [mg/l] ;

- $C_{bf}$  [mg/l];
- $V_{arg}$  [cm<sup>3</sup>];
- $V_f$  [cm<sup>3</sup>] =  $V_{bi} + V_{arg} + V_{CaCl_2}$ .

**Remarques :**

Pour une étude détaillée de la méthode au bleu de méthylène se reporter au rapport de D. Malsang [69].

## Annexe E

# Les mesures de densité par gammamétrie

### E.1 Introduction

La gammadensimétrie est une méthode non destructive qui permet d'obtenir des renseignements sur la compacité d'un solide ou la porosité d'un milieu poreux. Cette méthode est basée sur l'atténuation d'un faisceau de rayonnements gamma émis par un radio-élément après qu'il ait traversé un milieu adsorbant. Dans le cas d'un faisceau incident parallèle de photons gamma mono-énergétique traversant un milieu adsorbant d'épaisseur  $x$  et de masse volumique apparente  $\rho$ , la loi d'absorption s'écrit :

$$C = C_0 e^{-x (\mu' \rho \theta)}$$

$C_0$  est le taux de comptage en l'absence du matériau ;

$C$  est le taux de comptage après passage à travers le matériau ;

$\mu'$  est le coefficient d'adsorption massique du matériau.

Grâce à cette équation, on peut déterminer le paramètre recherché  $x$ ,  $\rho$  ou  $\mu$  en connaissant les deux autres et en mesurant le rapport  $\frac{C}{C_0}$ .

Dans le cas d'un échantillon constitué de plusieurs composants, cette relation devient :

$$C = C_0 e^{-x \sum (\mu'_i \rho_i \theta_i)}$$

Les paramètres pris en compte pour nos calculs sont :

- le coefficient d'atténuation des billes (silice)  $\mu = 0,0767 \text{ cm}^2/\text{g}$ ;
- le coefficient d'atténuation de l'eau  $\mu_{eau} = 0,0857 \text{ cm}^2/\text{g}$ ;
- la masse volumique des billes  $\rho_b = 2,44 \text{ g}/\text{cm}^3$  ;
- l'épaisseur  $x$  est égale à 4,4 cm.

## E.2 Dispositif de mesure

Le banc de mesure par gammamétrie est constitué (fig. E.1) :

- d'une source de Césium 137 émettrice de rayonnements gamma ;
- d'un système de collimateurs permettant de délivrer un faisceau parallèle de photons gamma de diamètre de 5 mm ;
- d'une chaîne de détection et d'enregistrement des comptages constituée d'un ordinateur muni d'une carte de comptage qui permet à la fois l'acquisition des données et le dépouillement à l'aide des programmes conçus à cet effet ;
- d'une table élévatrice programmable équipée de différents plateaux mobiles et qui permet le positionnement de l'échantillon à analyser dans le faisceau.

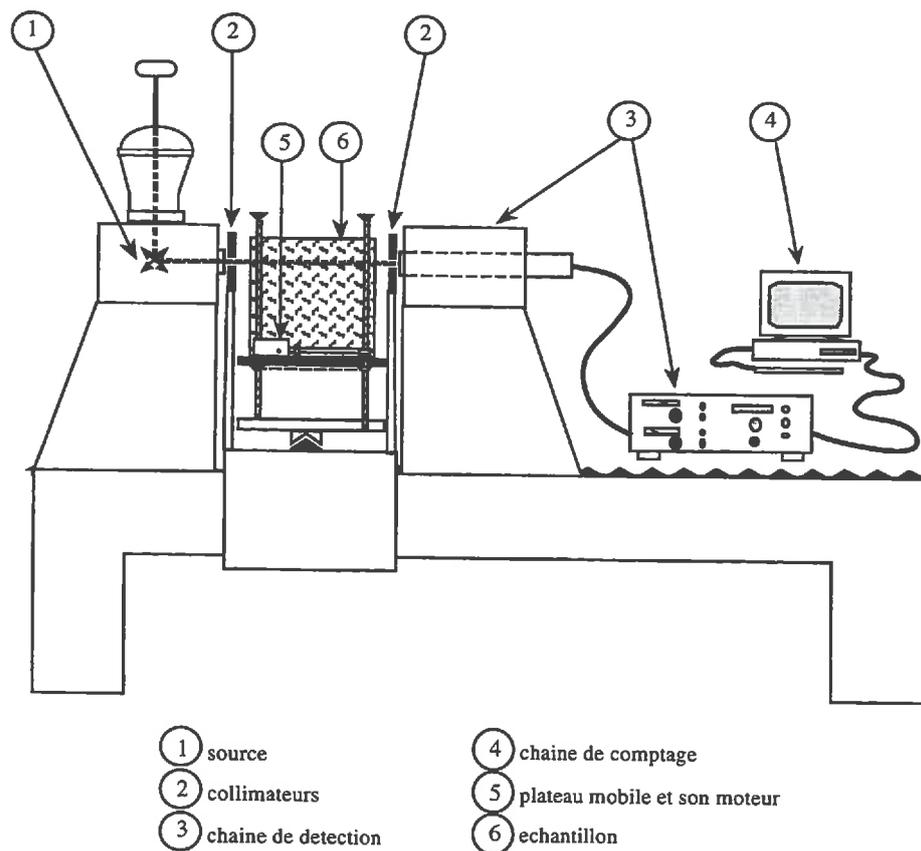


FIG. E.1 - Banc de mesures gammamétrique

## E.3 Protocole de mesure

L'appareillage étant très sensible aux variations thermiques, aussi ce dernier est installé dans une pièce climatisée.

L'échantillon de billes empilé dans le tube cylindrique, préparé suivant le protocole présenté au chapitre 2, est simplement posé sur le plateau (porte échantillon) mobile se situant entre la source et le détecteur. Le plateau mobile est animé de deux types de mouvements: un mouvement de rotation par angle de  $10^\circ$ , 18 fois pour ausculter un demi tour de l'échantillon (le faisceau traverse de part et d'autre l'épaisseur du matériau, il n'est donc pas nécessaire d'effectuer 36 rotations), et un mouvement de translation verticale suivant le pas d'avancement désiré.

Nous avons choisi un nombre de déplacements égal à 11, ce qui implique un pas d'avancement de 2,5 mm.

Le temps de comptage est de 2000 seconde par point, soit un temps par cycle égal à 444 minutes. Le dépouillement des résultats se fait par le programme leg81.

## E.4 Précision des mesures

L'émission de rayonnement gamma est un phénomène aléatoire, il est donc nécessaire pour que la mesure soit significative, d'effectuer une intégration des taux de comptage pendant un temps suffisamment long.

Pour évaluer l'erreur commise sur la mesure de la porosité, il est indispensable de connaître l'erreur sur le rapport  $\frac{C}{C_0}$ . Compte tenu du caractère aléatoire de l'émission radioactive, les valeurs de  $C$  et de  $C_0$  sont distribuées selon des lois normales associées à des écarts-type  $\sigma = \sqrt{C}$  et  $\sigma_0 = \sqrt{C_0}$ .

On sait également que le rapport  $Q = \frac{C}{C_0}$  suit une distribution normale dont l'écart-type s'écrit  $\sigma = \sqrt{\frac{1}{C} + \frac{1}{C_0}}$ .

Les mesures sont effectuées selon les temps  $t$  et  $t_0$ , l'erreur relative sur  $Q$  est :

$$\frac{\delta Q}{Q} = 2 \sqrt{\frac{1}{t C} + \frac{1}{t_0 C_0}}$$

La précision relative sur la mesure de la masse volumique devient :

$$\frac{\delta \rho}{\rho} = \frac{\delta x}{x} + \frac{\delta Q}{Q} \frac{1}{\mu' \rho x}$$

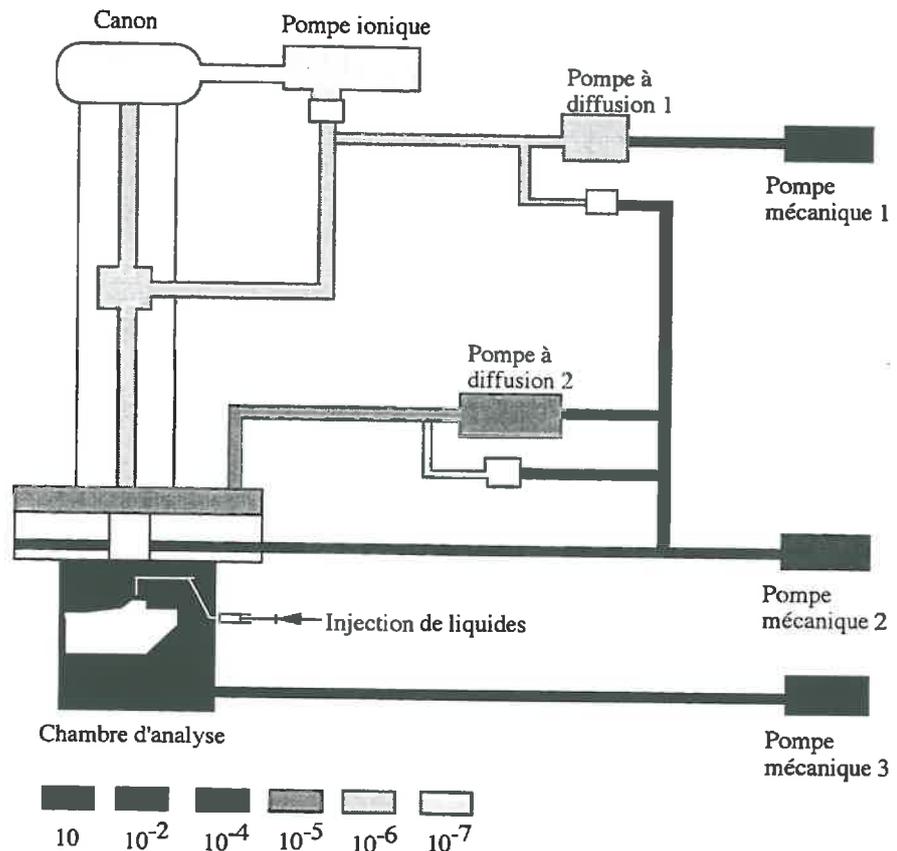


## Annexe F

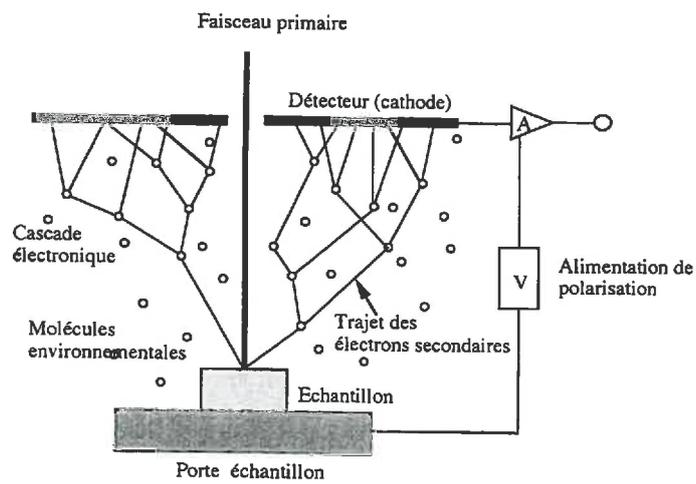
# Le microscope électronique à balayage environnemental

Le microscope environnemental est un des plus récents développements en matière de microscopie électronique à balayage. Il donne la possibilité d'observer des échantillons à l'état naturel, sans traitement spécifique sous une pression environnementale de l'ordre de la dizaine de torrs. Cette technique permet également de contrôler les contraintes extérieures qui s'appliquent à l'échantillon : par exemple l'atmosphère dans la chambre d'analyse peut être imposée selon les besoins (air, vapeur d'eau, azote,...etc.), mais également la température (de 20 à 1000 °C), le taux d'hydratation, l'injection d'un réactif, etc...

Contrairement au M.E.B [35] où la pression est la même du canon à la chambre d'analyse (environ  $10^{-7}$  torr), la pression, dans le microscope environnemental (fig. F.1 a), varie grâce à trois types de pompes différentes (pompe à palettes, pompe à diffusion, pompe ionique) de  $10^{-7}$  torrs au niveau du canon à la dizaine de torrs dans la chambre d'analyse. Au cours de l'auscultation, les électrons secondaires émis par la surface de l'échantillon entrent en collision avec les molécules environnementales, les ionisations qui ont lieu produisent des électrons supplémentaires (électrons secondaires environnementaux) et des ions positifs. Ce processus d'accélération et d'ionisation répété plusieurs fois, produit un phénomène de cascade électronique (ou avalanche électronique) conduisant à une amplification du signal original d'électrons secondaires qui devient ainsi facilement détectable par la cathode (fig. F.1 b).



(a)



(b)

FIG. F.1 - Schéma de principe pour le microscope environnemental montrant les différents étages de pompage différentiel (a), cascade électronique produisant l'amplification du signal des électrons secondaires(b)

## Annexe G

# Comptes Rendus de l'Académie des Sciences

# Instabilité du front de retrait lors du séchage d'une suspension d'argile dans un empilement granulaire

Claude GAUTHIER, Djaouida NADJI, Philippe COUSSOT

Laboratoire des matériaux et des structures du génie civil, UMR LCPC–CNRS 113, 2, allée Kepler, cité Descartes, 77420 Champs-sur-Marne, France

E-mail : philippe.coussot@lcpc.fr

(Reçu le 8 octobre 1997, accepté après révision le 27 mai 1998)

**Résumé.** Le séchage d'une suspension eau–argile au sein d'un empilement granulaire donne lieu à la formation de voiles d'argile sèche entre les grains. Ces voiles sont approximativement perpendiculaires à la direction d'avancement du front de séchage. Ils peuvent se situer à une distance importante (de l'ordre du rayon des grains) du point de contact entre les grains, et résultent en général de la déstabilisation de la surface libre lors du séchage d'une suspension entre deux surfaces solides. Des instabilités analogues du front de retrait se produisent au cours du séchage dans une géométrie plus simple (un dièdre ouvert sur les côtés). Nous montrons que, lors d'un séchage suffisamment lent, les différents aspects de cette instabilité ne semblent pas résulter d'un gradient de concentration solide au sein de la suspension, mais plutôt de l'augmentation globale de la concentration solide de la suspension résultant de l'évaporation. © Académie des Sciences/Elsevier, Paris

**séchage / suspension / argile / instabilité / fluide à seuil**

***Instability of the withdrawing front of a clay–water suspension slowly drying in a bead pack***

**Abstract.** *Drying a clay–water suspension within a bead pack leads to the formation of dry clay veils between grains. These veils are approximately perpendicular to the direction of advancement of the drying front and may be situated at a distance of the order of grain radius from the point of contact between grains. More generally we demonstrate that such veils result from the instability of the withdrawing front when a suspension dries between solid surfaces. For sufficiently slow drying, no significant gradient of solid fraction develops in the suspension and the different aspects of this instability seem to be in favour of a drying more or less 'as a whole'. © Académie des Sciences/Elsevier, Paris*

***drying / suspension / clay / instability / yield stress fluid***

## **Abridged English Version**

Drying a water–bentonite suspension within a granular pack gives rise to the formation of dry clay veils connecting the surface of grains far from their point of contact (*figure 1a*). They form during the last stage of drying when the clay–water suspension remains in the form of menisci between neighbouring grains, and finally contribute to increase the cohesion of the granular pack. The veils are

Note présentée par Pierre-Gilles de GENNES.

approximately perpendicular to the direction of displacement of the drying front and may be situated at a distance of the order of grain radius from the point of contact between grains. The experiment has been reproduced with simpler systems: two spheres in contact, a sphere lying on a plane (*figure 1b*), and two planes forming a dihedral. Similar veils form in each case whereas it was expected that the dried material would have accumulated close to the zone of contact between the solid surfaces.

The dihedral was made of glass planes through which it was possible to observe the formation of the veils (*figure 2*). In a first stage the evaporation yields a displacement of the largest free surface (corresponding to the largest distance between planes) in the direction of the line of contact of planes. When the front reaches a certain distance from this line the front (free surface) starts fluctuating. These fluctuations degenerate in air fingers which penetrate the suspension parallel to the initial front but below it. When two such fingers meet, the new front again fluctuates and the fingering process starts again while the suspension left behind goes on drying and finally thin layers (veils) of dry clay remain. The size of the air fingers increases with the distance from the line of contact so that finally a mazelike structure of dry clay veils connecting each plane forms (*figure 3*). The distance at which instability starts increases with the initial solid fraction of the suspension (*figure 4*). For solid fractions larger than a critical value the instability occurs in the form of fractures, almost as soon as evaporation starts.

During drying of gels or clay pastes the network of solid particles tends to shrink and may eventually fracture [1–3]. We first demonstrate that here no gradient of solid fraction close to the withdrawal front can cause the instability. First, this would form a region of concentrated suspension with a large yield stress [4, 5], which would more likely fracture than finger, as is observed in a dihedral for initially sufficiently concentrated suspensions. Additionally, the pressure drop to move this layer of concentrated mud would be much larger than necessary to move the lateral free surfaces of the suspension in the dihedral whereas no motion of these surfaces is observed in practice. In order to ensure this we made additional experiments with a film of oil along the withdrawal front and obtained analogous fingering as without oil. This proves that a longitudinal gradient of solid fraction (towards the withdrawal front) is not the cause of the instability and that in general evaporation mainly occurs along the lateral free surfaces.

Though for rapid drying (for example at large temperature) we observed the formation of darker regions close to the lateral free surfaces of the dihedral, this did not occur at sufficiently low rates of evaporation. Moreover, for dihedrals of various widths we observed the development of the instability more or less in a similar way in the central region (*figure 5*). This proves that the instability is not caused by a transverse gradient of solid fraction. Finally, since the critical distance ( $L$ ) below which the instability develops increases significantly with the initial solid fraction, all other things being equal, we conclude that the solid fraction increases more or less as a whole for sufficiently slow drying. This induces an increase of the suspension yield stress which is at the origin of the instability.

Analogous preliminary results are obtained when drying a layer of bentonite–water suspension between two parallel plates: fingering process for sufficiently slow rate of drying or sufficiently small initial solid fraction, and fractures otherwise. These results have some similarity with those obtained for the radial intrusion of a liquid in a clay–water suspension [6].

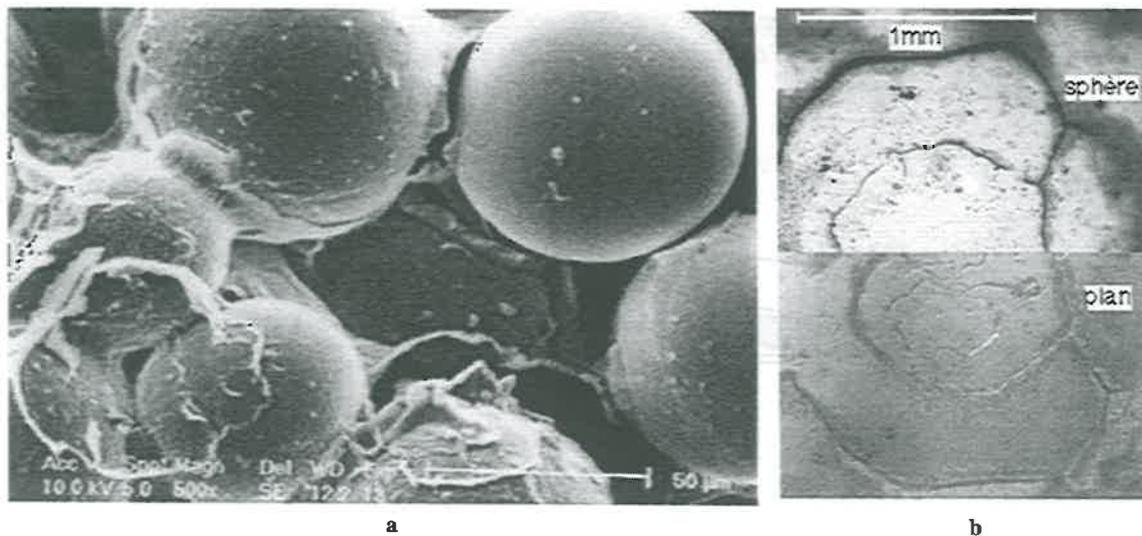
## 1. Introduction

L'étude de la résistance au décolmatage des chaussées poreuses (formées d'un squelette granulaire à pores connectés, constituant les couches superficielles de certaines routes) nous a conduits à faire percoler une suspension diluée d'argile (montmorillonite sodique) dans un empilement de billes de verre (diamètre 50–90  $\mu\text{m}$ ), puis à laisser évaporer la suspension à température ambiante (environ 20 °C). L'évaporation n'était possible que par la face supérieure du récipient cylindrique contenant l'empilement. On a ensuite prélevé des plaques de matériau à l'intérieur du massif, et observé la surface à l'aide d'un mi-

croscopie électronique à balayage. Ces observations montrent qu'il subsiste des voiles d'argile qui relient les billes entre elles et doivent être déterminants pour le colmatage et/ou la cohésion du massif. Dans le but de prédire cette cohésion à partir de la théorie de l'homogénéisation, il est nécessaire de comprendre le mécanisme de formation de ces dépôts argileux. Pour cela, nous avons réalisé des expériences de séchage de ces suspensions au sein de géométries plus simples permettant d'observer et de quantifier le phénomène.

## 2. Séchage d'une suspension dans un empilement

Dans la première phase du séchage d'une suspension eau-argile au sein d'un empilement granulaire, bien que des bulles d'air se soient formées un peu partout dans l'échantillon, la suspension forme un réseau connecté d'un bout à l'autre. Dans une deuxième phase cependant, le réseau est discontinu, car les grains fins utilisés génèrent des forces capillaires importantes qui empêchent la formation d'une surface libre horizontale pénétrant l'intérieur de l'échantillon au cours du séchage. Dans la dernière phase, il subsiste alors localement des ménisques de suspension entre deux particules voisines. Ce mécanisme se poursuit jusqu'au moment où les ménisques deviennent disjoints. À partir de là, la concentration solide au sein de chaque ménisque augmente progressivement. On s'attend alors à ce qu'un front de séchage, plus concentré que le reste de la suspension, se forme près de la surface libre du ménisque, et progresse vers le point de contact entre les grains. Dans ces conditions, après le séchage complet du massif, il ne devrait subsister que des liens d'argile sèche situés très près des points de contact. Or, il n'en est rien. À l'aide d'un microscope, sont observées des couronnes d'argile ou leurs empreintes, d'un diamètre variable, qui peut être de l'ordre du rayon des billes (*figure 1a*). Avec des sphères de plus grande taille (5 mm)



**Figure 1.** (a) Vue de l'intérieur du massif de billes après séchage complet de la suspension eau-argile avec des voiles d'argile sèche situés autour des points de contact entre les billes. (b) Sur la photo, obtenue après séparation d'une sphère et d'un plan, entre lesquels on a laissé sécher la suspension, on voit effectivement les traces symétriques laissées par les voiles s'appuyant sur les surfaces correspondantes. Ici, les ramifications des voiles vers le point de contact sont surtout visibles sur le plan.

**Figure 1.** (a) Inner view of the bead pack after complete drying of the clay-water mixture. The veils of dry clay appear around the points of contact between grains. (b) The tracks of the veils leaning against each solid surface are, for example, apparent after separation of a plane and a sphere between which a suspension has dried. Here, the branching structure of the veils mainly appears on the plane.

ou un système sphère–plan, des traces symétriques sur les deux faces sont obtenues après évaporation, montrant que celles-ci étaient jointes par un voile d’argile analogue (figure 1b).

### 3. Séchage dans un dièdre

Une géométrie plus simple, un dièdre avec un angle faible (quelques degrés) constitué de lames de verre, permet d’observer facilement le phénomène (figure 2). Dans ce cas, la surface d’évaporation (surface libre) initiale est approximativement constituée (en faisant abstraction de la courbure de la surface libre perpendiculairement au dièdre) d’une partie rectangulaire (« front ») et de deux parties triangulaires (« surfaces latérales »). Cependant, comme pour les ménisques compris entre deux sphères, l’évaporation induit une augmentation de la fraction solide et, principalement, un « déplacement » de la suspension vers la ligne de contact des deux plans. Lorsque l’évaporation est complète, un réseau de membranes d’argile, reliant les deux lames de verre, subsiste. Après séparation de ces lames, il y a une parfaite symétrie des deux traces, ce qui montre qu’il s’agit encore de voiles s’appuyant sur chaque paroi. Un film de l’évaporation montre (figure 3) qu’au début, le retrait du ménisque est régulier et son profil est à peu près rectiligne. Puis, ce profil commence à onduler. Les irrégularités, qui se propagent initialement dans la direction générale du retrait, prennent ensuite des directions perpendiculaires. La pénétration de l’air isole ainsi des parties de la suspension qui s’immobilisent. Le retrait de la suspension se poursuit alors sur le front avant, dans la direction initiale, tandis que les parties restées en arrière forment des presqu’îles, desquelles l’eau continue à s’évaporer, et qui, par conséquent, se rétractent. Dans le front en mouvement, le phénomène se reproduit, ce qui laisse finalement la série de voiles toujours interconnectée. À volume de fluide fixé, les premières ondulations du front se produisent d’autant plus tôt au cours du retrait, que la concentration solide initiale est grande (figure 4 et tableau I). Cependant, lorsque la concentration dépasse une valeur critique qui dépend de la vitesse de séchage et de la géométrie du problème, un autre phénomène se produit : des lignes de fracture se propagent d’abord du front vers l’arête du dièdre, puis

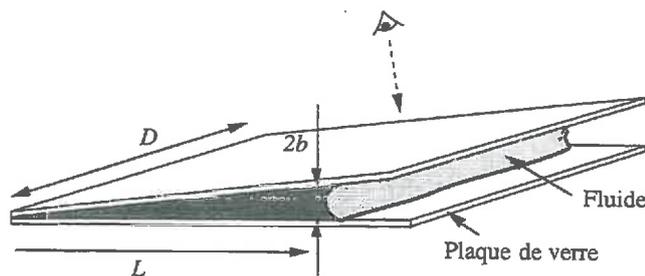


Figure 2. Principe de l’expérience de séchage de la suspension eau–bentonite dans un dièdre.

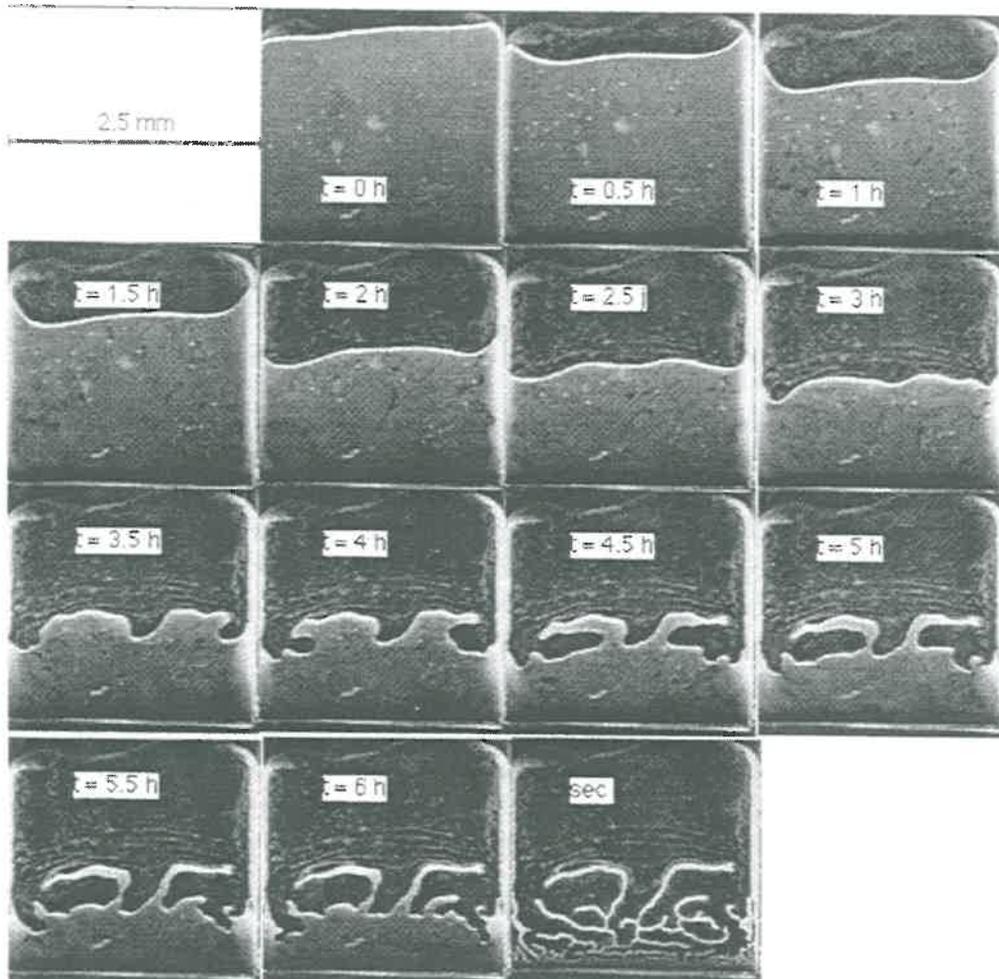
Figure 2. Principle of the experiment of drying of a water–bentonite suspension within a dihedral.

Tableau I. Résultats complémentaires concernant les instabilités obtenues lors du séchage dans un dièdre ( $D = 120$  mm).

Table I. Additional results concerning the instability during the drying of a suspension in a dihedral ( $D = 120$  mm).

Front de retrait	Suspension–air					Suspension–huile					
	$2\beta$ (j)	0,38	0,15	0,38	0,38	0,38	0,76	0,76	0,38	0,38	0,38
$\phi$ (%)	0,43	0,43	0,43	0,22	0,97	0,56	0,56	0,43	0,43	0,43	0,22
$L_0$ (mm)	49	76	14	73	13,5	38	44	33	41	35	18,5
$L$ (mm)	33	58	6,5	31	12	31	33	23	36	27	10

### Instabilité du front de séchage d'une suspension eau-argile



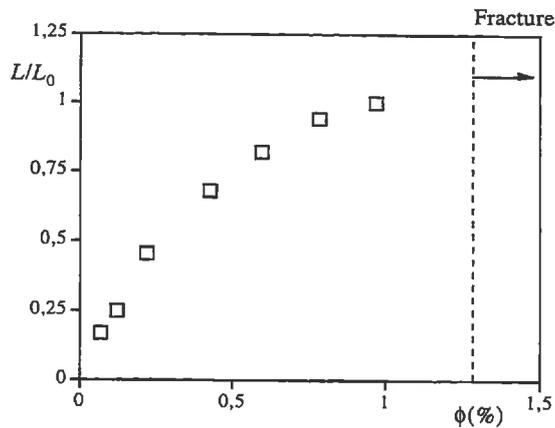
**Figure 3.** Vue, à travers l'une des plaques de verre, de l'évolution d'une suspension eau-argile ( $\phi = 0,43\%$ ) à différents moments au cours du séchage dans un dièdre étroit ( $D = 26$  mm,  $2\beta = 1,33^\circ$ ). La suspension se retire progressivement vers la ligne de contact entre les plans (en bas sur les photos). Essentiellement la surface libre, plus claire à cause de la réflexion de la lumière, est visible. Celle-ci avance d'abord lentement vers l'arête du dièdre, puis se met à onduler.

**Figure 3.** Aspect of a clay-water suspension (mainly the free surface is visible) ( $\phi = 0.43\%$ ) at different times during drying in a relatively small dihedral ( $D = 26$  mm,  $2\beta = 1.33^\circ$ ). The free surface first slowly withdraws towards the line of contact, then fluctuates and eventually degenerates (see text).

d'autres fractures se forment plus ou moins perpendiculairement à celles-ci. Ces fractures provoquent des « ouvertures » de la suspension et la séparent en petits îlots totalement disjoints.

#### 4. Expériences complémentaires et éléments d'interprétation physique

Au cours du séchage d'une suspension, du fait du flux d'eau sous forme de vapeur qui traverse la surface libre, la concentration solide du système près de l'interface suspension-air augmente. Dans le cas de suspensions de silice, cela peut donner lieu à des fractures régulièrement espacées [1]. Au cours du séchage, les gels de polymères ou les pâtes d'argile peuvent, quant à eux, se contracter dans un



**Figure 4.** Distance d'apparition de l'instabilité (premières ondulations visibles à l'œil nu) dans un dièdre ( $D = 120$  mm,  $L_0 = 40$  mm,  $2\beta = 0,38^\circ$ ) à la température ordinaire (environ  $20^\circ\text{C}$ ) en fonction de la concentration solide initiale du mélange eau-bentonite. La façon dont les surfaces du verre sont préalablement nettoyées (à l'eau, à l'alcool, avec un concentré alcalin (Hellmanex II)) n'a apparemment aucune influence significative sur le développement de l'instabilité.

**Figure 4.** Distance of onset of the instability (first visible waves) in a dihedral ( $D = 120$  mm,  $L_0 = 40$  mm,  $2\beta = 0.38^\circ$ ) at the ambient temperature (about  $20^\circ\text{C}$ ) as a function of the initial solid concentration of the bentonite-water mixture. The influence of the previous treatment of the solid surfaces (cleaned with acid, alcohol, or a concentrate alkalin (Hellmanex II)) was negligible.

premier temps, puis se fracturer [2, 3]. Le gradient de concentration solide entre la surface d'évaporation et l'intérieur de l'échantillon est d'autant plus marqué que le temps de séchage est court par rapport au temps nécessaire au système pour rééquilibrer sa concentration.

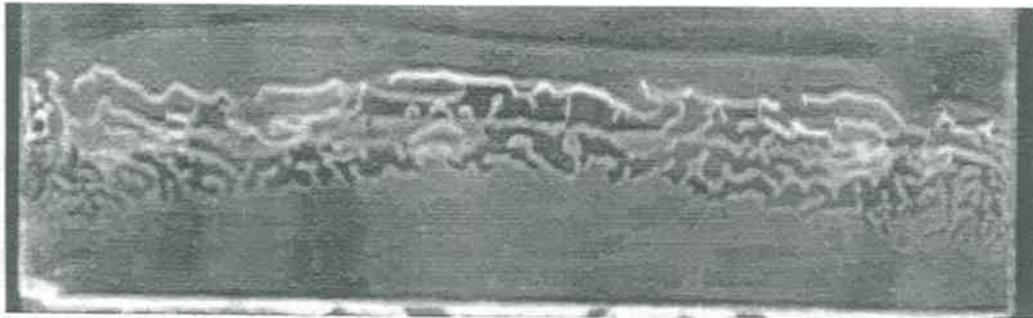
Remarquons d'abord que la géométrie que nous utilisons est très particulière, puisqu'elle permet l'évaporation à la fois par le « front » de retrait, confiné entre les deux surfaces solides, et par les surfaces latérales (triangulaires) du dièdre. Il est, d'emblée, tentant de penser que les phénomènes observés se produisant essentiellement au niveau du front de retrait, l'évaporation ou bien un éventuel gradient de concentration très élevé près de la surface du front jouent un rôle fondamental vis-à-vis de l'instabilité. Il est cependant possible d'écarter ces hypothèses. En effet, un front de séchage concentré formerait une suspension ayant un seuil de contrainte [4, 5] qui augmenterait rapidement avec l'accumulation des particules solides au cours du retrait. La valeur de ce seuil, estimée en fonction de l'épaisseur approximative du voile restant en fin d'expérience et de la distance d'apparition de ce voile, est de plusieurs ordres de grandeur supérieure aux contraintes résultant des forces capillaires latérales. Par conséquent, un front de ce type aurait une rigidité telle que le retrait du fluide devrait se continuer essentiellement par les surfaces libres latérales du dièdre, ce qui ne se produit pas significativement. En outre, si, dans ces conditions, l'avancement du front était malgré tout privilégié, il se ferait probablement sous la forme de fractures telles que celles que l'on observe lorsque l'on part directement d'une suspension concentrée.

Afin d'écarter définitivement cette hypothèse, nous avons réalisé des expériences analogues dans des dièdres, en ajoutant un film d'huile sur le front d'avancement. De cette façon, l'évaporation ne peut se produire que par les côtés du dièdre. Dans ce cas, l'instabilité se déclenche à peu près au même moment et se développe de manière grossièrement analogue, plus lentement toutefois dans la phase finale (après la formation des premiers doigts). Lorsqu'un film d'huile recouvre le front de retrait, l'avancement de ce front est simplement lié à l'évaporation par les côtés, et aucun phénomène ne permet donc d'induire une accumulation des particules près de l'interface suspension-huile. Nous en déduisons donc, d'une part, que l'instabilité n'est pas liée à l'accumulation des particules au front de retrait et, d'autre part, que même en l'absence d'huile, l'évaporation par le front de retrait est négligeable dans la phase initiale du séchage (avant la formation des premiers doigts).

Plus généralement, on peut se demander si un gradient de concentration quelconque est à l'origine de l'instabilité. Si un tel gradient existe, il ne peut se former qu'à partir des surfaces latérales par lesquelles l'essentiel de l'évaporation se produit. Des expériences de séchage plus rapides, en augmen-

### Instabilité du front de séchage d'une suspension eau-argile

tant la température ambiante ou la convection près des surfaces latérales, permettent d'observer la formation de dégradés de couleurs plus foncées près des surfaces libres, qui reflètent clairement l'existence de gradients de concentration. Le mélange eau-bentonite est, en effet, pratiquement transparent à une concentration de 0,1 %, jaune clair à 0,5 %, jaune à 1 %, jaune foncé à 2 % et marron clair à 4 %. Cependant, dans l'expérience de base qui nous intéresse ici (séchage lent à l'air ambiant et angle faible), ce phénomène est apparemment négligeable, probablement parce que l'évaporation est suffisamment lente (de 3 à 15 jours dans le cas des expériences présentées *figure 4*). Notons cependant que près des surfaces libres latérales, le retrait du front est un peu plus rapide et la longueur d'onde des fluctuations du front plus petite sur une distance de l'ordre de  $L$  et ce, quelle que soit la largeur du dièdre utilisé ( $D/L$  allant de 1 à 10). À partir d'une certaine largeur de dièdre, il existe en revanche une zone centrale (*figure 5*) le long de laquelle l'instabilité se produit toujours de la même manière pour un séchage suffisamment lent, avec de l'air ou de l'huile le long de l'interface. L'instabilité de cette zone centrale n'est donc pas liée à un gradient de concentration solide transversal.



**Figure 5.** Aspect de la surface libre durant le séchage d'une suspension eau-bentonite ( $\phi = 0,43$  %) dans un dièdre ( $D = 120$  mm,  $2\beta = 0,6^\circ$ ,  $L_0 = 40$  mm), avec un film d'huile le long du front (de retrait). Les parties grises inférieures correspondent à la suspension, les parties plus sombres intermédiaires correspondent à l'huile. Celle-ci est en contact avec une bonne partie du front ramifié de la suspension, mais quelques voiles (partie supérieure) semblent maintenant à l'air libre, du fait d'un volume d'huile insuffisant.

**Figure 5.** Aspect during drying of a water-bentonite suspension ( $\phi = 0.43$  %) within a wide dihedral ( $D = 200$  mm,  $2\beta = 0.6^\circ$ ,  $L_0 = 40$  mm). The lowest grey regions correspond to suspension; the darkest intermediate regions correspond to oil. Oil is in contact with most of the ramified, withdrawal front but some veils (in the upper part) now seem to be in contact with air because the oil volume was not sufficient.

En l'absence de gradients de concentration transversaux et longitudinaux, la concentration solide augmente donc à peu près de manière homogène au sein du dièdre. Pour confirmer cette hypothèse, on peut réaliser une succession très particulière d'expériences de séchage : partant d'un mélange à la concentration  $\phi_0$  avec une distance  $L_0$  par rapport à l'arête du dièdre, l'instabilité se produit à partir d'une distance  $L$ . Si l'on repart d'une suspension de concentration  $\phi_0$  avec une distance  $L$ , l'instabilité ne se développe que lorsque la distance  $L'$  est très différente de  $L$ . En revanche, si l'on repart d'une suspension de concentration  $\phi_0(L_0/L)$  avec une distance  $L$ , l'instabilité se développe très rapidement après le début du séchage. Cette concentration est justement celle que l'on obtient en supposant une rétraction en masse de la suspension de concentration  $\phi_0$ , depuis  $L_0$  jusqu'à la distance  $L$ . Des résultats d'expériences montrent ce phénomène (*tableau I*), notamment en partant des conditions initiales suivantes ( $D = 120$  mm,  $2\beta = 0,38^\circ$ ) :  $L_0 = 41$  mm et  $\phi = 0,43$  % ou  $L_0 = 73$  mm et  $\phi = 0,22$  %. Cela assure donc encore la cohérence des résultats vis-à-vis de l'hypothèse d'une augmentation à peu près uniforme de la concentration pour un séchage suffisamment lent. Ainsi, l'instabilité ne se produit dans

### C. Gauthier et al.

chaque cas que lorsque l'augmentation de la concentration globale, à cause de l'évaporation latérale, est suffisante. Les expériences à différentes concentrations initiales, toutes choses égales par ailleurs, nous montrent que le rapport  $L/L_0$  varie effectivement clairement avec la concentration initiale (figure 4).

Une instabilité analogue se produit probablement lors du séchage d'une suspension de bentonite comprise entre deux sphères. Cependant, ici, la surface d'évaporation initiale, approximativement cylindrique et centrée autour du point de contact entre les grains, est aussi le front de retrait. Dans ce cas, si le séchage n'est pas assez lent, un gradient de concentration peut se former dans la direction du retrait et jouer un rôle important vis-à-vis du développement de l'instabilité.

### 5. Conclusion

Des phénomènes analogues se produisent pour des couches (circulaires) de suspension eau-bentonite confinées entre deux surfaces parallèles (évaporation par l'interface circulaire extérieure suspension-air) : digitations lorsque le séchage est suffisamment lent et la concentration initiale de la suspension suffisamment faible, fractures à forte concentration et/ou grande vitesse de séchage. Cependant, l'évolution (parcours) du front de retrait peut être plus complexe car le parallélisme des surfaces ne permet plus d'imposer aussi clairement une direction privilégiée de retrait et la distribution des contraintes peut beaucoup dépendre des conditions exactes d'évaporation. Ces résultats peuvent cependant déjà être rapprochés de ceux obtenus lors de l'injection radiale d'un fluide dans une cellule de Hele-Shaw contenant une suspension eau-argile [6] : digitations à faible vitesse d'injection et/ou faible concentration solide, fractures à grande vitesse et/ou forte concentration.

**Remerciements.** Ce travail a bénéficié de discussions fructueuses avec C. Allain, A. Azouni, Y. Berthaud, X. Chateau, P. Mills, M. Rabaud et H. Van Damme, et de l'aide technique de J.-C. Borgotti, P. Moucheront, J.-P. Guilbaud et D. Dufresne. Nous remercions vivement ces personnes pour l'intérêt et le temps qu'ils ont bien voulu nous accorder.

### Références bibliographiques

- [1] Allain C., Limat L., Regular patterns of cracks formed by directional drying of a colloidal suspension, *Phys. Rev. Lett.* 74 (1995) 2981–2984.
- [2] Macey H.H., Clay-water relationship and the internal mechanism of drying, *Trans. Brit. Ceram. Soc.* 41 (1942) 73–120.
- [3] Scherer G.W., Aging and drying of gels, *J. Non-Cryst. Solids* 100 (1988) 77–92.
- [4] Sherwood J.D., Meeten G.H., Farrow C.A., Alderman N.J., Squeeze-film rheometry of non-uniform mudcakes, *J. Non-Newt. Fluid Mech.* 39 (1991) 311–334.
- [5] Coussot P., *Mudflow Rheology and Dynamics*, IAHR monograph, Balkema, Rotterdam, 1997, 260 pp.
- [6] Lemaire E., Levitz P., Daccord G., Van Damme H., From viscous fingering to viscoelastic fracturing in colloidal fluids, *Phys. Rev. Lett.* 67 (1991) 2009–2012.

# Critère d'instabilité du front de retrait lors du séchage lent d'une suspension d'argile dans un dièdre

Philippe COUSSOT, Claude GAUTHIER, Djaouida NADJI

Laboratoire des matériaux et des structures du génie civil, UMR LCPC-CNRS 113, 2, allée Kepler, cité Descartes, 77420 Champs-sur-Marne, France

E-mail : philippe.coussot@lpc.fr

(Reçu le 3 décembre 1997, accepté après révision le 4 juin 1998)

**Résumé.** Le séchage d'une suspension eau-argile au sein d'un dièdre donne lieu à la formation de voiles d'argile sèche entre les surfaces solides, qui résultent de la déstabilisation du front de retrait. Considérant que, lorsque le processus est suffisamment lent, la suspension sèche sans qu'un gradient de concentration solide significatif ne se forme au sein du mélange, le retrait de la suspension lié au séchage peut être assimilé à l'écoulement d'un fluide à seuil soumis à l'instabilité de Saffman-Taylor. Par une approche théorique simple, on montre que cette instabilité se produit lorsque le seuil de contrainte dépasse une valeur critique proportionnelle à la distance locale entre les plaques et à la tension interfaciale. La position des premiers voiles prédite par cette théorie en fonction de la concentration solide initiale de la suspension est en accord avec les expériences. © Académie des Sciences/Elsevier, Paris

séchage / suspension / argile / instabilité / fluide à seuil

## *Criterion of instability of the withdrawing front of a clay-water suspension slowly drying in a dihedral*

**Abstract.** *Drying a clay-water suspension within a dihedral leads to the formation of dry clay veils which result from the instability of the withdrawing front. Considering that the suspension dries but no significant gradient of solid fraction develops, the fluid withdrawal can be considered as the flow of a yield stress fluid subjected to the Saffman-Taylor instability. A simple theoretical approach shows that the flow is unstable when the yield stress of the fluid is larger than a critical value proportional to the local distance between the solid surfaces and proportional to the surface tension. The position of the first veils predicted by this theory as a function of the initial solid fraction of the suspension is in agreement with the experiments. © Académie des Sciences/Elsevier, Paris*

*drying / suspension / clay / instability / yield stress fluid*

Note présentée par Pierre-Gilles de GENNES.

### ***Abridged English Version***

It has been shown [1] that during the drying of a bentonite–water suspension in a dihedral the withdrawal front is unstable. Moreover, it was demonstrated that for sufficiently slow drying the water mainly evaporates through the lateral free surfaces of the dihedral so that the instability is essentially due to the overall increase of the solid fraction of the remaining suspension.

Due to large interactions between clay particles immersed in water, water–bentonite suspensions are yield stress fluids for solid fraction larger than a critical value [2, 3]. In simple shear this means that these fluids can flow only when the applied shear stress is larger than a critical, finite value (yield stress). Thus, the viscosity of such fluids is mainly due to the resistance to flow of this interacting network of particles. During our specific experiment, i.e. drying in a dihedral with lateral evaporation and no concentration gradient, the interacting network progressively increases its concentration while moving slowly towards the line of contact (between the planes of the dihedral) (*figure 1*). For example, during a small time  $\Delta t$ , at the level  $x$  above the line of contact, solid particles move a distance  $qx\Delta t/D$  towards the line of contact while the relative increase of solid fraction is  $2q\Delta t/D$ . Since we are dealing with yield stress fluids, the motion of the interacting network of particles though extremely slow is sufficient to induce the Saffman–Taylor instability [4] of the front.

A simple theory for the Saffman–Taylor instability for yield stress fluids in a dihedral, based on Hill's [6] approach, can be proposed. First this requires one to have an equivalent of Darcy's law for yield stress fluids. Using a generalized expression for their simple shear behaviour [7, 8] it is easily found that Darcy's law in that case is expressed as equation (1). For the flow (mean velocity  $U$ ) of a yield stress fluid between two parallel plates (separating distance  $2b$ ) we assume a perturbation of the front of the form  $\eta = \varepsilon \exp(ikz + \omega t)$ , where  $\varepsilon$  is much smaller than  $D$  and  $L$ ,  $k$  is the wave number,  $\omega$  the growth rate and  $t$  the time. In that case the additional force applied to the fluid can be directly deduced [equation (2)] by taking into account the additional viscous force and the additional front curvature ( $\sigma$  is the surface tension). From equation (2) we find that, if the instability appears in practice only when the maximum growth rate corresponds to a wavelength smaller than the width of the front, it should occur only when the yield stress is larger than a critical value depending on surface tension and distance between planes, even for vanishing velocities. This result is in agreement with that of Coussot [5] who provided a direct, two-dimensional analysis of Saffman–Taylor instability for yield stress fluids.

When studying the instability in a dihedral it is also necessary to take into account the decrease of local distance between plates as the fluid moves towards the line of contact. This can be done by adding in equation (2) an appropriate additional pressure term due to curvature change as a result of the perturbation. The new critical yield stress value for instability is again easily deduced [equation (3)]. If in addition we take into account the yield stress increase of the remaining suspension as it dries, we obtain an expression for the distance from the line of contact below which instability should be apparent [equation (4)]. Here the yield stress was assumed to depend on concentration as found by Sherwood et al. [9] for bentonite–water mixtures and the solid fraction was supposed to increase as a whole as the front withdrew.

The above theory [equation (4)] is in rather good agreement with the experimental results of Gauthier et al. [1] (*figure 2*). The forms and size of the fingers can hardly be predicted by the theory which only concerns instability onset. The theory could be used for other geometries under the condition that no significant concentration gradient develops as in the very specific experiments of Gauthier et al. [1] for which in particular the withdrawal front was not the main surface of evaporation.

## 1. Introduction

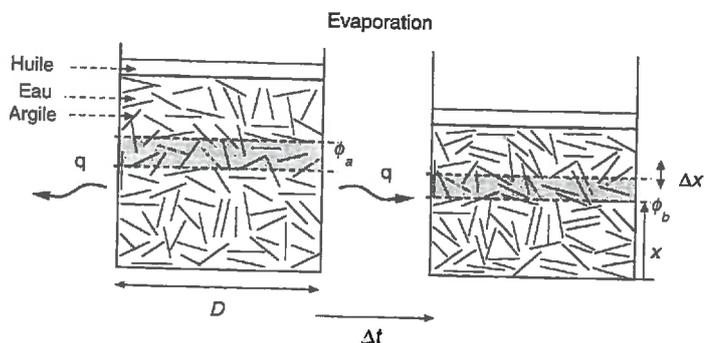
Un travail précédent a montré que le front de retrait lié au séchage d'une suspension de bentonite entre deux surfaces non parallèles peut être instable [1]. Lorsque le séchage est suffisamment lent, cette instabilité résulte d'une augmentation globale de la concentration solide dans le système. Nous nous proposons ici d'examiner les raisons physiques de cette instabilité. Nous montrons que le réseau de particules solides avance lentement vers l'arête du dièdre tout en se concentrant, puis nous proposons une théorie simple, fondée sur l'instabilité de Saffman-Taylor pour un fluide à seuil et permettant de prédire les conditions d'apparition de ce phénomène.

## 2. Nature du mouvement dans le dièdre

Au sein de ces suspensions, la position de chaque particule d'argile résulte d'un équilibre entre des forces d'attraction de type van der Waals, et des forces de répulsion liées à la diffusion (doubles couches) dans l'eau des cations échangeables à la surface des particules. La loi de comportement mécanique de ces mélanges, quoique complexe, est assez bien connue [2]. Au-delà d'une concentration critique, il y a formation d'un réseau (d'interactions) entre les particules, ce qui induit l'existence d'un seuil de contrainte ( $\tau_c$ ), c'est-à-dire d'une valeur critique de la contrainte en deçà de laquelle ces fluides ne peuvent s'écouler. Lorsque la contrainte appliquée est inférieure au seuil de contrainte, le fluide se comporte approximativement comme un solide élastique. En outre, ces fluides sont fortement thixotropes, c'est-à-dire que leur viscosité varie au cours du temps pendant l'écoulement (ou en fonction du temps de repos préalable). En particulier, cela peut engendrer un comportement instable lié à un minimum dans la loi de comportement [3], mais, pour des mouvements aussi lents et réguliers que ceux qui nous concernent ici, les effets liés à la thixotropie sont très probablement négligeables. En revanche, le seuil de contrainte peut jouer un rôle important puisque, d'une part, il représente une part prédominante des contraintes visqueuses pour des mouvements lents et, d'autre part, il augmente rapidement avec la concentration solide. Notons que, pour des mouvements lents, les dissipations de type hydrodynamique (liées aux mouvements de l'eau interstitielle) restent négligeables.

Considérons le cas idéal d'une suspension dans un dièdre, avec une interface suspension-huile le long du front de retrait. Dans la mesure où l'évaporation par ce front reste faible, des conclusions analogues pourraient être tirées du cas du séchage avec une interface suspension-air le long de ce front. Examinons ce qui se passe au sein d'une petite tranche de suspension perpendiculaire au dièdre. Celle-ci est traversée par des flux d'eau qui s'échappent sous forme gazeuse par les côtés du dièdre (*figure 1*). Le bilan des flux dans la direction  $Ox$  doit être approximativement nul puisqu'il n'y a pas de flux d'eau aux frontières de la suspension dans cette direction. En revanche, les flux latéraux induisent une augmentation de la concentration solide. Comme le nombre de particules solides reste quant à lui constant, cela se traduit par une diminution de volume de la tranche. Chaque tranche de ce type entre le front d'avancement et l'arête du dièdre subit ainsi une rétraction qui induit un mouvement d'ensemble des particules solides. Supposons que le flux d'eau ( $q$ ) sous forme vapeur par unité de surface liquide est constant. Alors, pendant un petit intervalle de temps  $\Delta t$ , au niveau  $x$  par rapport à l'arête du dièdre, les particules solides avancent d'une distance  $qx\Delta t/D$  vers l'arête du dièdre. Pendant ce temps, la concentration solide ( $\phi$ ) augmente en valeur relative de  $2q\Delta t/D$ .

Ainsi, le réseau de particules a tendance à se rétracter sur lui-même, tout en avançant lentement vers l'arête du dièdre. L'augmentation de ( $\phi$ ) intervient seulement au second ordre et l'on peut considérer que, pendant un petit laps de temps, le réseau de particules reste à peu près constant. En



**Figure 1.** Mécanisme de contraction du réseau de particules liée à l'évaporation, et conséquence sur les mouvements de ce réseau dans un dièdre (ici vu de face). Sous l'effet de l'évaporation latérale, pendant une durée  $\Delta t$ , le réseau passe d'une concentration  $\phi_a$  à  $\phi_b$  et une tranche située en  $x$  avance d'un incrément  $\Delta x$ .

**Figure 1.** Shrinkage of the interacting network due to evaporation and the consequence on its motion in a dihedral (here frontal view). Due to lateral evaporation, during a time  $\Delta t$ , the concentration of the network decreases from  $\phi_a$  to  $\phi_b$  and a portion of this network situated at a distance  $x$  from the line of contact moves of  $\Delta x$ .

revanche, le mouvement de cette tranche de réseau « moyen » est tout à fait fondamental, car nous avons affaire à des fluides à seuil, pour lesquels le moindre « écoulement », ou mouvement au-delà d'une déformation critique, nécessite des efforts finis, contrairement aux fluides newtoniens. Finalement, ce réseau de particules solides se comporte un peu comme une éponge imbibée d'eau et coincée entre deux plans. Lorsque l'on presse cette éponge, il faut appliquer une force suffisante pour faire sortir l'eau et vaincre les frottements de l'éponge contre les plans.

Puisque le réseau (d'interactions) de particules solides est à la base des propriétés mécaniques de la suspension pour des mouvements lents, tout se passe comme si l'on repoussait la suspension vers l'arête du dièdre entre les plans, tout en augmentant sa concentration solide. Le problème se ramène alors à celui du retrait, au sein d'un dièdre, d'un fluide devenant de plus en plus visqueux. Les forces qui jouent un rôle prédominant sont alors les forces capillaires et les forces visqueuses, et l'instabilité de l'écoulement de ce fluide n'est pas sans rappeler celle de Saffman-Taylor [4]. Pour une cellule de largeur donnée et en négligeant les effets de bord, une instabilité se produit alors avec un fluide newtonien uniquement lorsque la vitesse moyenne de déplacement du front dépasse une valeur critique. Dans notre cas, les mouvements sont extrêmement lents (inférieurs au millimètre par heure), mais une théorie de l'instabilité due au déplacement d'un fluide à seuil par un fluide peu visqueux dans une cellule de Hele-Shaw [5] a montré que cette instabilité peut se produire même à des vitesses infiniment faibles, lorsque  $\tau_c$  est supérieur à une valeur critique. Cela est qualitativement cohérent avec nos observations dans le cas du séchage. En effet, la concentration solide au sein de l'ensemble du fluide augmente progressivement au cours du retrait, du fait de l'évaporation. Au-delà d'une certaine distance de retrait, cette concentration peut dépasser la valeur critique correspondant au seuil de contrainte critique conduisant à une instabilité. Des fluctuations du front peuvent alors dégénérer. Ce phénomène est irréversible car, par la suite,  $\phi$  (et donc  $\tau_c$ ) augmente sans cesse au cours de l'évaporation.

### 3. Critère d'instabilité lors du séchage lent d'une suspension dans un dièdre

Les calculs détaillés de Coussot [5], prenant notamment en compte les expressions des champs de pressions et de vitesses, s'appliquent à l'écoulement entre deux plaques parallèles. On peut renouveler de manière plus simple cette analyse d'instabilité dans le cas d'un dièdre et appliquer ces résultats au cas du séchage d'une suspension, en utilisant l'approche de Hill [6] dans le cas d'un fluide à seuil

### Critère d'instabilité du front de séchage d'une suspension d'argile

poussé par un fluide de viscosité négligeable. Pour cela, nous avons besoin, pour ces suspensions, de l'équivalent d'une loi de Darcy : différence de pression ( $\Delta p$ ) par unité de longueur ( $\Delta x$ ) en fonction de la vitesse moyenne d'écoulement  $U$  (positive selon  $x$ ), pour un écoulement permanent laminaire unidimensionnel à travers un milieu poreux (ou entre deux plaques parallèles séparées par une distance  $2b$ ). Le comportement de ce type de suspensions [7, 8] en cisaillement simple permanent peut en général être modélisé par  $\dot{\gamma} = 0 \Leftrightarrow \tau < \tau_c$ ;  $\dot{\gamma} \neq 0 \Leftrightarrow \tau = \tau_c + f(\dot{\gamma})$  où  $\tau$  est l'amplitude de la contrainte tangentielle, et  $\dot{\gamma}$  l'amplitude du gradient de vitesse.  $f$  est en général une fonction continue croissante (sauf pour les fluides à minimum [3]) de  $\dot{\gamma}$  qui est telle que  $f(0) = 0$ . Dans ces conditions, d'après l'équilibre des forces sur une portion de fluide entre deux plaques, l'équivalent de la loi de Darcy pour les fluides à seuil (en l'absence de glissement) doit prendre la forme suivante :

$$\frac{\Delta p}{\Delta x} = -\alpha \left[ \frac{\tau_c}{b} + F(|U|, b) \right] \quad (1)$$

où  $\alpha$  est le signe de  $U$ , et  $F$  est en général une fonction positive qui décroît avec  $b$ , croît avec  $|U|$ , et tend vers zéro quand  $U$  tend vers zéro. La forme exacte de  $F$  dépend bien entendu de  $f$ , mais n'a pas d'importance pour les mouvements très lents qui nous concernent, puisqu'elle tend alors vers zéro. L'équation (1) exprime à nouveau le fait qu'un écoulement a lieu uniquement lorsque la différence de pression entre les bornes de l'écoulement est suffisamment grande. En l'absence d'écoulement, l'équation (1) n'est pas valable, le gradient de pression est indéterminé et inférieur en valeur absolue à  $\tau_c/b$ .

Supposons maintenant que ce fluide pousse ou est poussé par un autre fluide de viscosité négligeable. Lorsque l'écoulement est stable, la frontière (front) entre les deux fluides reste perpendiculaire (selon  $z$ ) à la direction du mouvement. Considérons une petite perturbation périodique de ce front  $\eta = \varepsilon \exp(ikz + \omega t)$ , où  $\varepsilon$  est beaucoup plus petit que  $D$  et  $L$  (respectivement la largeur de fluide selon  $z$  et la longueur de fluide selon  $x$ ),  $k$  est le nombre d'onde,  $\omega$  le taux de croissance de la perturbation et  $t$  le temps. La longueur du fluide visqueux dépend donc maintenant de  $z$  et vaut  $L + \eta$ . On suppose que l'angle de mouillage et la courbure de la surface libre dans le plan  $(x, y)$  restent constants. La force additionnelle par unité de surface ( $dp$ ), appliquée au fluide et résultant du déplacement local  $\eta$ , peut être grossièrement estimée. Il s'agit de la somme de la force (due à la viscosité) liée à l'écoulement supplémentaire de fluide et de celle (due à la tension superficielle) liée à la nouvelle courbure du front dans le plan  $(x, z)$  :

$$dp = \left[ -\alpha \left( \frac{\tau_c}{b} + F(|U|, b) \right) - \sigma k^2 \right] \eta \quad (2)$$

où  $\sigma$  est la tension interfaciale. Si cette force additionnelle est du signe de  $\eta$ , tout déplacement sera amplifié, ce qui conduira à l'instabilité du front. Compte tenu de ce qui a été dit précédemment sur l'indétermination du gradient de pression en l'absence d'écoulement, l'écriture de l'équation (2) suppose qu'un écoulement se produise même dans les zones « retardées » par rapport au reste du fluide. Il est ainsi possible de déterminer les conditions d'apparition de l'instabilité (qui correspondent à  $\eta \rightarrow 0$ ), car celle-ci ne se produit qu'à partir d'une situation d'écoulement aussi lent soit-il ( $U$  est non nul). On peut ainsi supposer que, à une vitesse très faible mais non nulle, les régions qui restent en arrière sont encore en mouvement dans le sens de l'écoulement moyen, au moins au tout début de

l'instabilité. En revanche, on ne peut pas prétendre prédire les évolutions des fluctuations de la surface à l'aide de l'équation (2), à partir du moment où des régions du fluide sont totalement arrêtées.

En négligeant les effets de bords, la valeur minimale de  $k$  est  $2\pi/D$  compte tenu de la conservation de la masse. Il résulte de (2) que le front est (apparemment) instable lorsque le fluide visqueux est poussé par l'autre, même pour des mouvements extrêmement lents, dès que le seuil de contrainte du fluide est supérieur à  $\tau_{c0} = b\sigma(2\pi/D)^2$ . Ce résultat est identique à celui trouvé dans le cadre d'une analyse plus rigoureuse tenant compte, entre autres, des champs de pression et de vitesse au sein du fluide [5].

Dans le cas de l'écoulement, dans un dièdre, dans la direction de décroissance de la distance entre les surfaces solides, il faut maintenant modifier la théorie précédente pour tenir compte des variations spatiales de cette distance. Lorsque l'angle formé par le dièdre ( $2\beta$ ) est faible, les termes de frottement supplémentaires induits par la variation de distance sont du second ordre vis-à-vis des autres termes de frottement apparaissant dans l'équation (2). En revanche, il faut tenir compte d'un terme de pression supplémentaire lié à la variation de la différence de pression à l'interface lorsque la distance entre les plaques varie. On suppose toujours que l'angle de mouillage ( $\theta$ ) du fluide avec les parois solides dans le plan ( $x, y$ ) reste constant. En première approximation, la courbure moyenne dans ce plan vaut  $b/\cos\theta$ . Lorsque le front subit une perturbation  $\eta$ , le terme de pression supplémentaire lié à la variation de distance entre les plaques est donc, au premier ordre  $-\eta\sigma\beta\cos\theta/b^2$ , terme qu'il convient maintenant d'ajouter dans le terme de droite de l'équation (2).

Un mouvement lent est donc instable lorsque le seuil de contrainte atteint une valeur critique définie par :

$$\tau_{c0} = \sigma \left[ b \left( \frac{2\pi}{D} \right)^2 + \frac{\beta \cos \theta}{b} \right] \quad (3)$$

La valeur théorique de  $L$  (distance entre le front et l'arête du dièdre) correspondant au développement de l'instabilité peut donc être déterminée en tenant compte de l'évolution du seuil de contrainte lorsque la concentration augmente. Il n'existe pour l'instant, dans ce domaine que des lois empiriques. Les expériences les plus complètes sont celles de Sherwood et al. [9] qui a montré que le seuil de contrainte suivait une loi du type  $\tau_c = K\phi^3$  ( $\tau_c$  en Pa) où  $K$  est un coefficient qui varie en fonction du temps de repos préalable de la suspension. Nous utiliserons ici  $K = 2$ , ce qui correspond à un temps de repos de quelques heures d'après les expériences de Sherwood et al., et qui est aussi la durée caractéristique de nos expériences de séchage (la valeur exacte de ce coefficient a, de toute façon, une influence faible pour la comparaison expérience-théorie, car il est finalement élevé à la puissance 0,2). Afin de confirmer cette hypothèse, nous avons aussi effectué des mesures du seuil de contrainte pour certains de nos mélanges ( $\phi$  compris entre 1 et 3 %) en utilisant la méthode du plan incliné [8] : une couche de fluide est répartie uniformément sur un plan horizontal progressivement incliné, jusqu'à obtenir l'écoulement du fluide. Comme il s'agit aussi de fluides possédant un minimum dans la loi de comportement [3], le début d'écoulement est particulièrement brutal, contrairement à ce qui se passe pour des fluides à seuil ordinaires. Lorsque le temps de repos avant l'inclinaison progressive du plan est de l'ordre d'1 h, les valeurs de seuils de contrainte mesurés correspondent presque exactement aux valeurs prédites par la formule précédente en utilisant  $K = 2$ . Cette technique est cependant inadaptée pour des fluides à seuil inférieur à 1 Pa ( $\phi < 1\%$ ) car des effets de tension de surface interviennent alors.

Par ailleurs, la concentration instantanée de la suspension en fonction du retrait s'écrit  $\phi = \phi_0(L_0/L)^2$  où  $L_0$  est la distance initiale du front par rapport à l'arête du dièdre et  $\phi_0$  est la

### Critère d'instabilité du front de séchage d'une suspension d'argile

concentration solide initiale. Finalement, on déduit de l'équation (3) une formule implicite donnant la distance d'apparition de l'instabilité en fonction des autres paramètres :

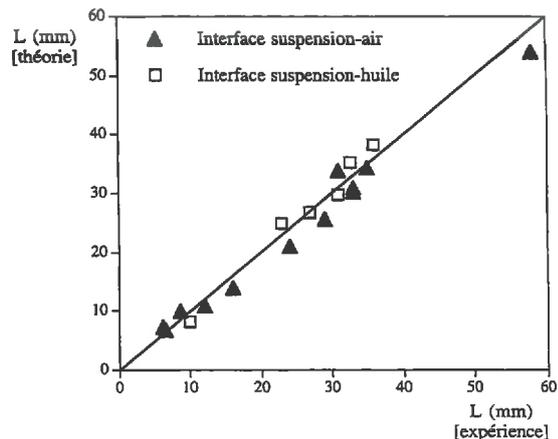
$$\frac{L}{L_0} = \left[ \frac{2\phi_0^3 L_0}{\sigma \cos \theta + \sigma\beta(2\pi L/D)^2} \right]^{1/5} \quad (4)$$

Lorsque  $\beta$  est petit, le second terme au dénominateur du terme de droite de l'équation (4) est négligeable et l'on obtient une formule explicite pour  $L$ .

L'angle de contact de l'eau sur les plaques de verre est environ de  $20^\circ$ . Il est probable que l'angle de contact de la suspension soit proche de cette valeur (en pratique, il est difficile de distinguer les effets de tension interfaciale des effets dus au seuil de contrainte). Dans le cas de l'interface suspension-huile, les surfaces peuvent subir des mouillages et dé mouillages successifs par la suspension et l'huile, au cours de la mise en place (délicate) de l'échantillon entre les plaques. Il est alors difficile d'apprécier les conditions finales de mouillage de la suspension sur les plaques. Pour les calculs, nous avons finalement utilisé l'approximation  $(\cos \theta)^{0.2} \approx 1$  dans tous les cas. La figure 2 montre alors que la formule (4), établie dans le cas de l'écoulement homogène d'un fluide poussé par de l'air, prédit correctement les résultats expérimentaux concernant l'apparition de l'instabilité lors du mouvement lié au retrait de la suspension du fait de son séchage, sans aucun paramètre de calage. En outre, cette théorie prédit que l'instabilité doit se produire presque immédiatement pour des fluides suffisamment concentrés, pour lesquels  $\tau_c > \tau_{c0}(L_0)$ , ce qui est effectivement observé expérimentalement.

**Figure 2.** Séchage de différents volumes de suspensions de bentonite à différentes concentrations initiales dans un dièdre ( $D = 120$  mm) (mesures présentées dans [1]). Distance d'apparition de l'instabilité calculée à partir de la théorie [équation (4)] en fonction de la distance d'apparition mesurée. Le trait plein correspond à la courbe d'accord parfait entre expériences et théorie.

**Figure 2.** Drying of different volumes of water-bentonite suspensions at different initial solid fractions ( $D = 120$  mm)[1]. Distance of appearance of the instability as predicted from theory [equation (4)] as a function of the measured distance. The solid line corresponds to a perfect agreement between theory and experiments.



S'il nous paraît maintenant possible de prédire le moment d'apparition de l'instabilité, il est cependant beaucoup plus difficile d'expliquer la forme du labyrinthe qui se forme ensuite [1]. On peut néanmoins proposer une explication qualitative concernant le fait que les doigts qui se forment ont tendance à pénétrer le fluide en travers, derrière le front initial. Lorsqu'un doigt pénètre plus avant dans le dièdre, les forces liées à la différence de pression à l'interface augmentent car la distance locale entre les plaques diminue, alors que les forces visqueuses ne changent pratiquement pas. En outre, comme au début de l'instabilité, il est toujours énergétiquement plus favorable pour le fluide de se retirer sous forme de doigts. Ceux-ci vont donc avoir tendance à s'orienter dans les directions de plus faible énergie superficielle, c'est-à-dire longitudinalement. Lorsque deux doigts de ce type se sont rejoints, il se

**P. Coussot et al.**

produit une nouvelle instabilité au niveau du nouveau front ainsi formé. Le phénomène se reproduit donc avec une longueur d'onde prédominante plus petite puisque le fluide restant est plus concentré (donc possède un seuil de contrainte plus élevé), ce qui explique les ramifications des voiles lorsque l'on se rapproche de l'arête du dièdre.

#### 4. Conclusion

Appliquée au front de retrait dû au séchage d'une suspension dans un dièdre, cette théorie permet de prédire la position des premiers voiles d'argile sèche reposant sur les deux surfaces solides. Cette approche peut aisément être adaptée (à partir de l'équation (3)) à des cas de séchage de suspensions au sein de géométries plus complexes, par exemple, les intervalles entre un plan et une, deux ou trois billes. Il suffit pour cela de déterminer la valeur de l'angle local ( $2\beta$ ) entre les surfaces et le volume de fluide restant, en fonction de la distance locale entre ces surfaces ( $2b$ ). Dans ce cas général,  $D$  est alors une longueur caractéristique du front de retrait. Cependant, les conditions de séchage qui nous ont permis de mener à bien la comparaison expérience-théorie étaient très particulières puisque, d'une part, le front de retrait et les surfaces d'évaporation étaient distinctes, et, d'autre part, le séchage était suffisamment lent pour que la concentration solide ait le temps de s'équilibrer. Lorsque ces conditions ne sont pas réunies, un gradient de concentration significatif peut se former à partir du front de retrait, et le critère d'instabilité dépend donc de l'histoire thermodynamique du système.

**Remerciements.** Ce travail a bénéficié de discussions fructueuses avec C. Allain, A. Azouni, Y. Berthaud, X. Chateau, P. Mills, M. Rabaud et H. van Damme.

#### Références bibliographiques

- [1] Gauthier C., Nadji D., Coussot P., Instabilité du front de retrait lors du séchage d'une suspension d'argile dans un empilement granulaire, C. R. Acad. Sci. Paris, série Iib 326 (1998) 767-774.
- [2] Alderman N.J., Meeten G.H., Sherwood J.D., Vane rheometry of bentonite gels, J. Non-Newt. Fluid Mech. 39 (1991) 291-310.
- [3] Coussot P., Leonov A.I., Piau J.M., Rheology of concentrated dispersed systems in a low molecular weight matrix, J. Non-Newt. Fluid Mech. 46 (1993) 179-217.
- [4] Homsy G.M., Viscous fingering in porous media, Ann. Rev. Fluid Mech. 19 (1987) 271-311.
- [5] Coussot P., The Saffman-Taylor instability for yield stress fluids, J. Fluid Mech. (soumis).
- [6] Hill S., Channelling in packed columns, Chem. Eng. Sci. 1 (1952) 247-253.
- [7] Doraiswamy D., Mujumdar A.N., Tsao I., Beris A.N., Danforth S.C., Metzner A.B., The Cox-Merz rule extended: a rheological model for concentrated suspensions and other materials with a yield stress, J. Rheol. 35 (1991) 647-685.
- [8] Coussot P., Mudflow Rheology and Dynamics, IAHM monograph, Balkema, Rotterdam, 1997, 260 pp.
- [9] Sherwood J.D., Meeten G.H., Farrow C.A., Alderman N.J., Squeeze-film rheometry of non-uniform mudcakes, J. Non-Newt. Fluid Mech. 39 (1991) 311-334.